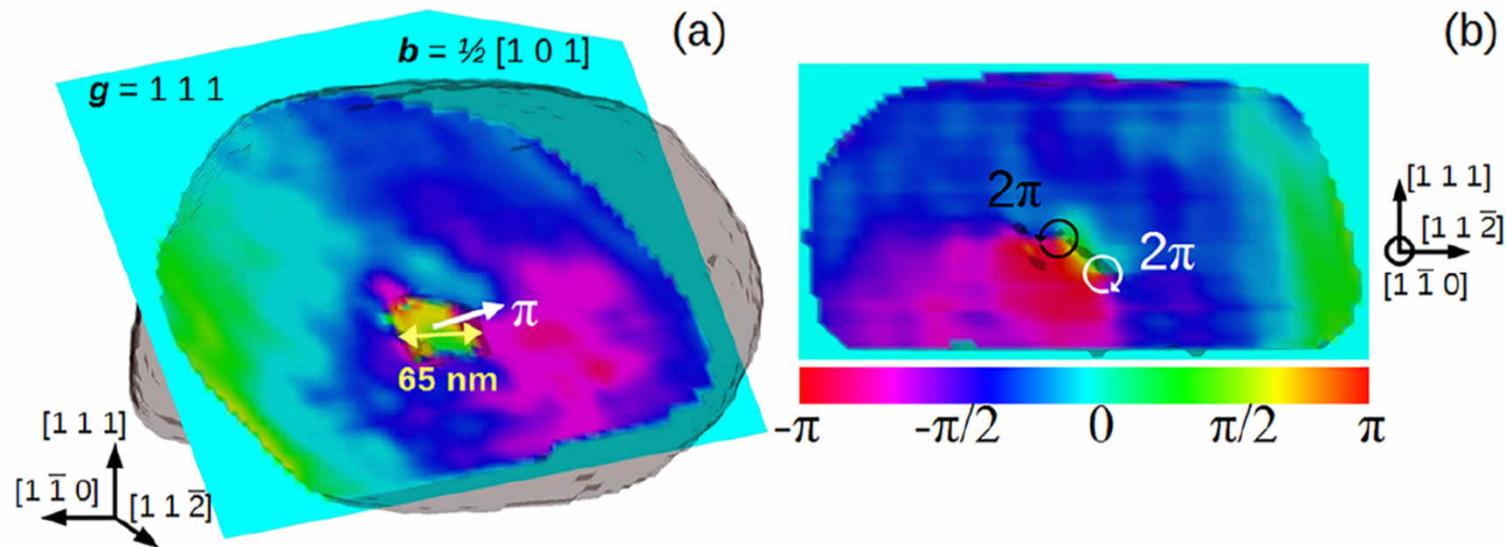


Détection de défauts cristallins par diffraction cohérente des rayons X

Journée thématique « Défauts dans les cristaux »



Vincent JACQUES

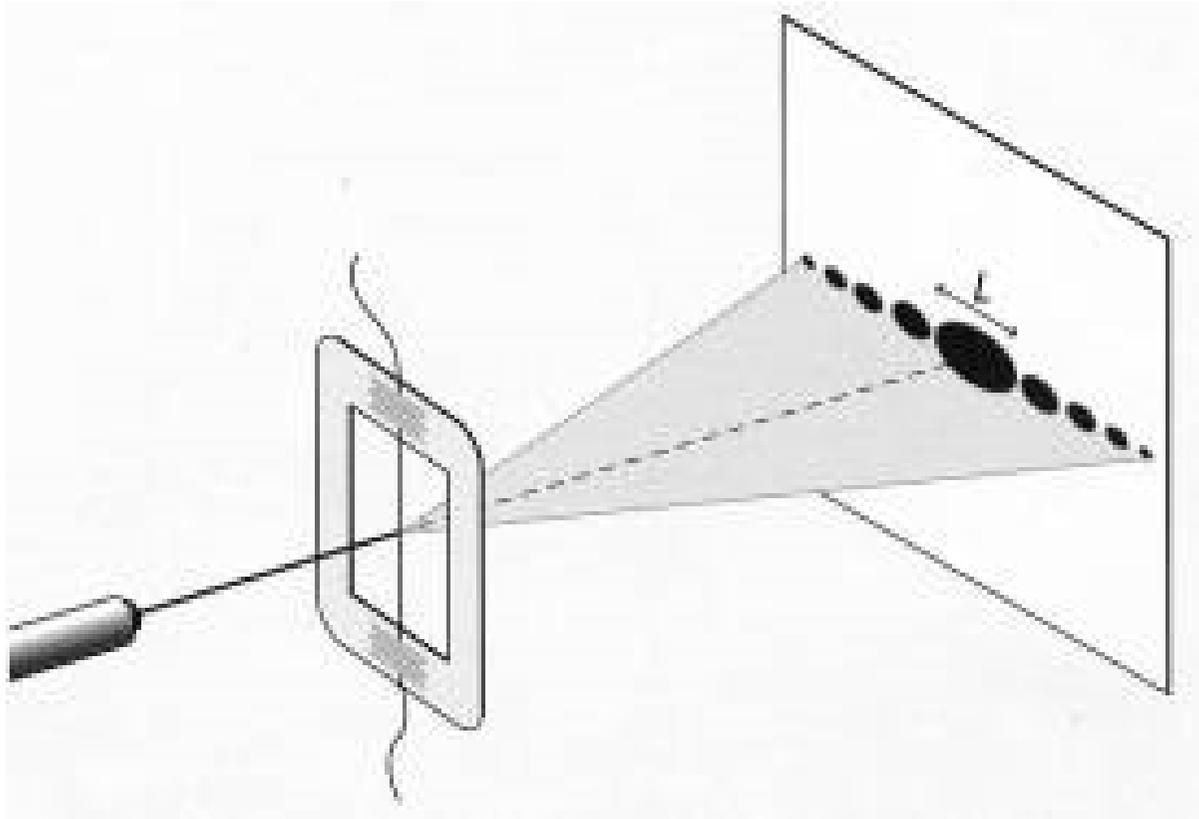
Laboratoire de Physique des Solides, CNRS, Université Paris-Saclay, 91405 Orsay

vincent.jacques@universite-paris-saclay.fr

2-3 septembre 2021 - Lyon

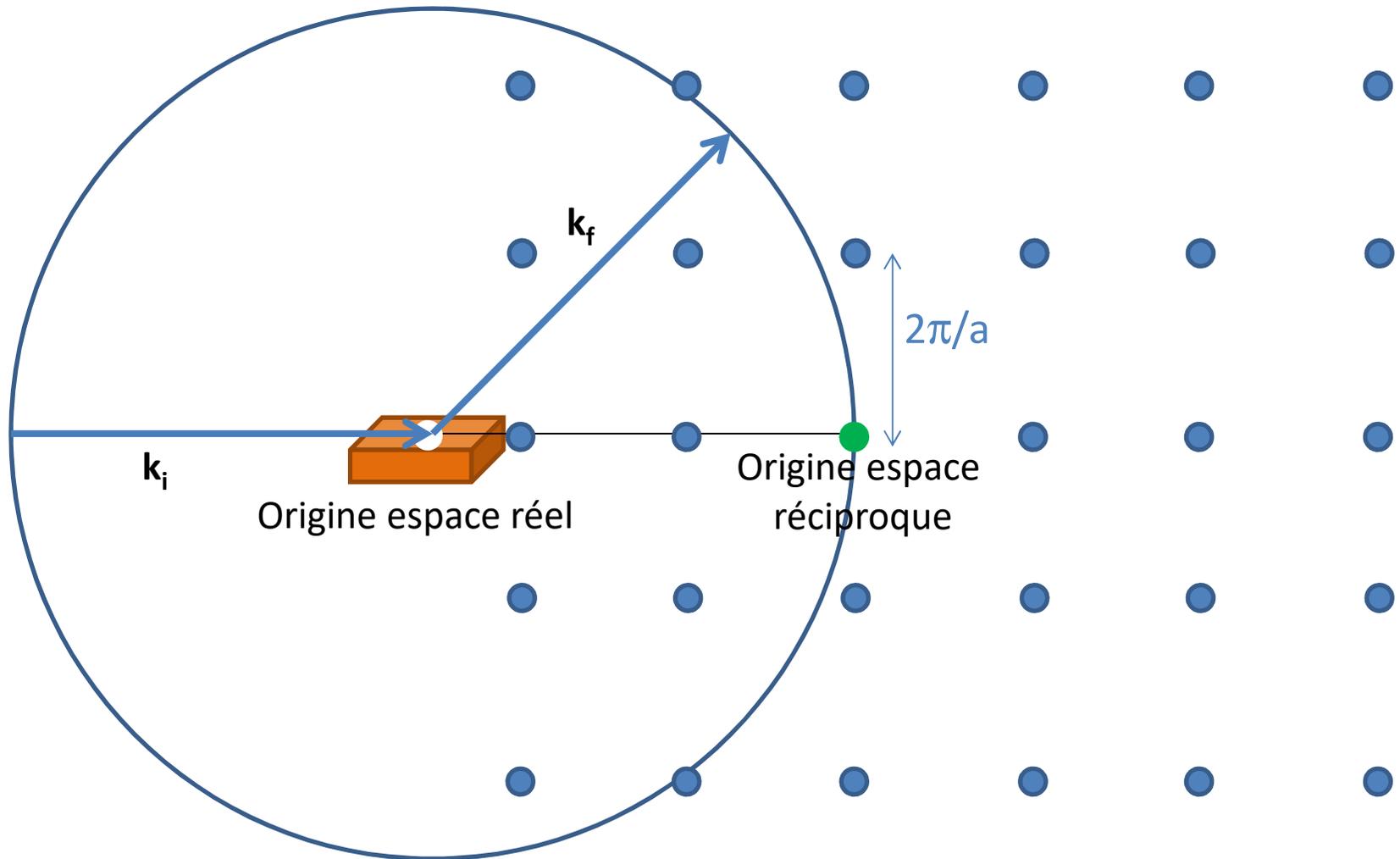
Une source cohérente standard: le laser visible

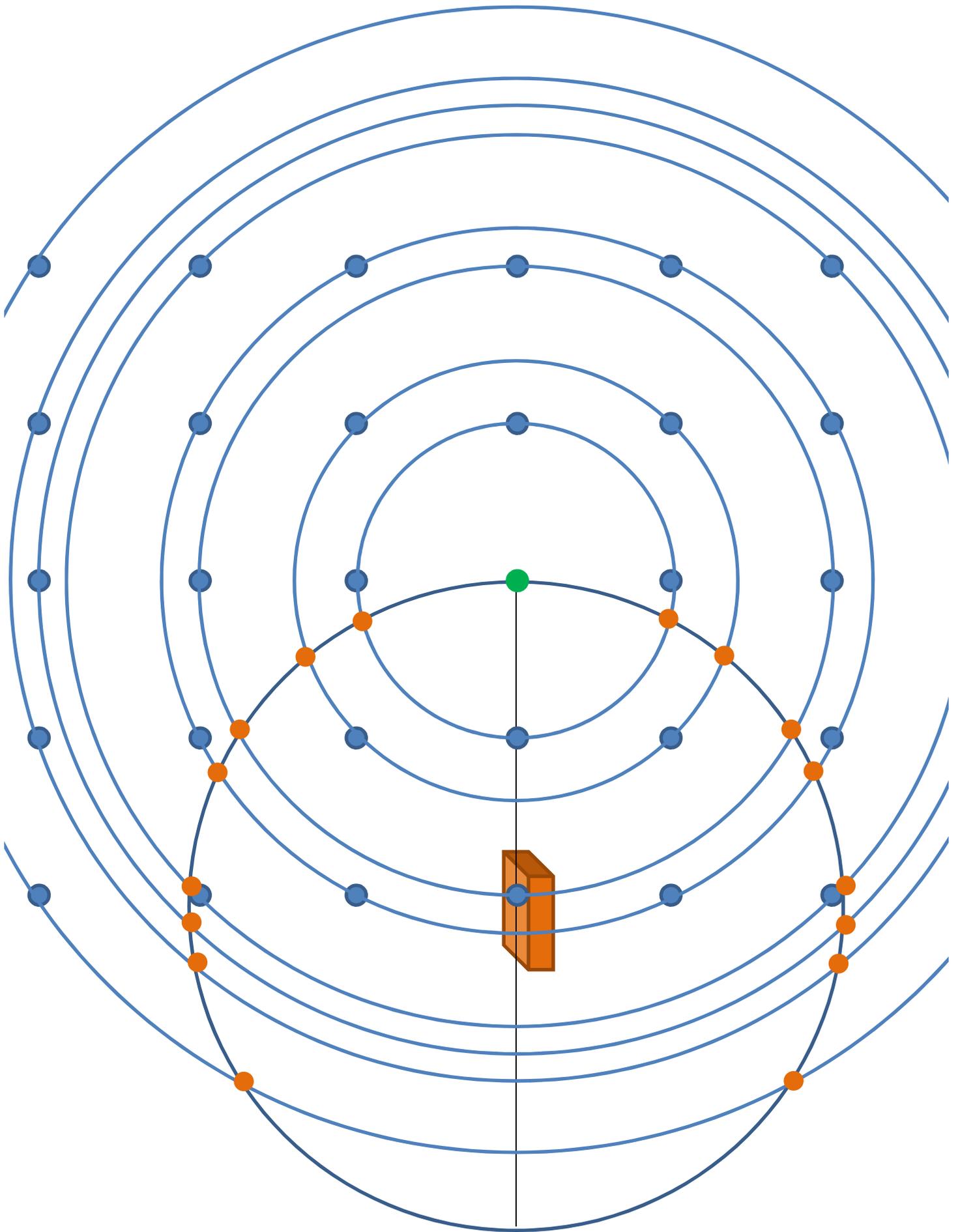
$\lambda = 530\text{nm}$ Quelle taille typique d'objet a peut-on faire diffracter?

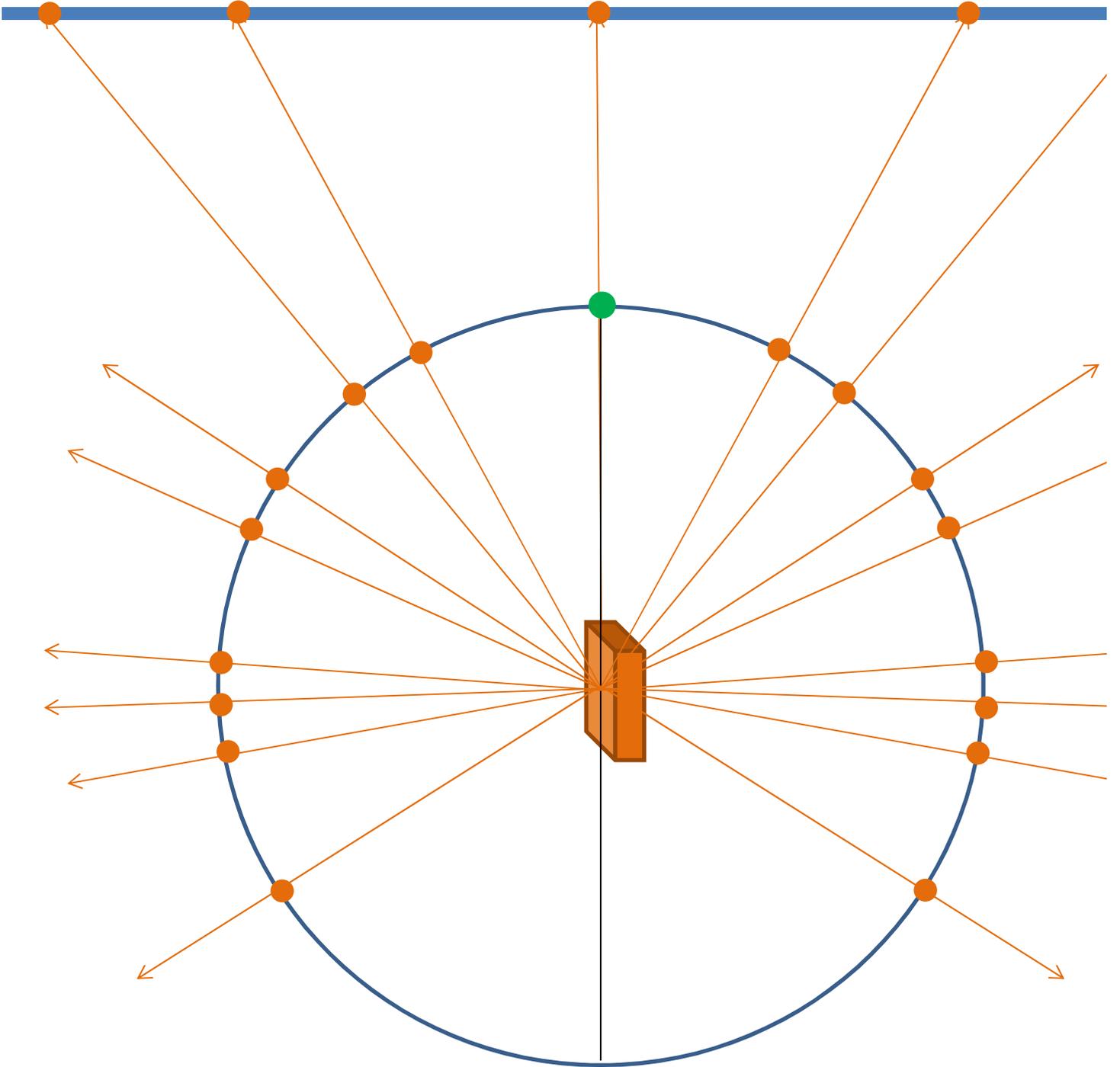


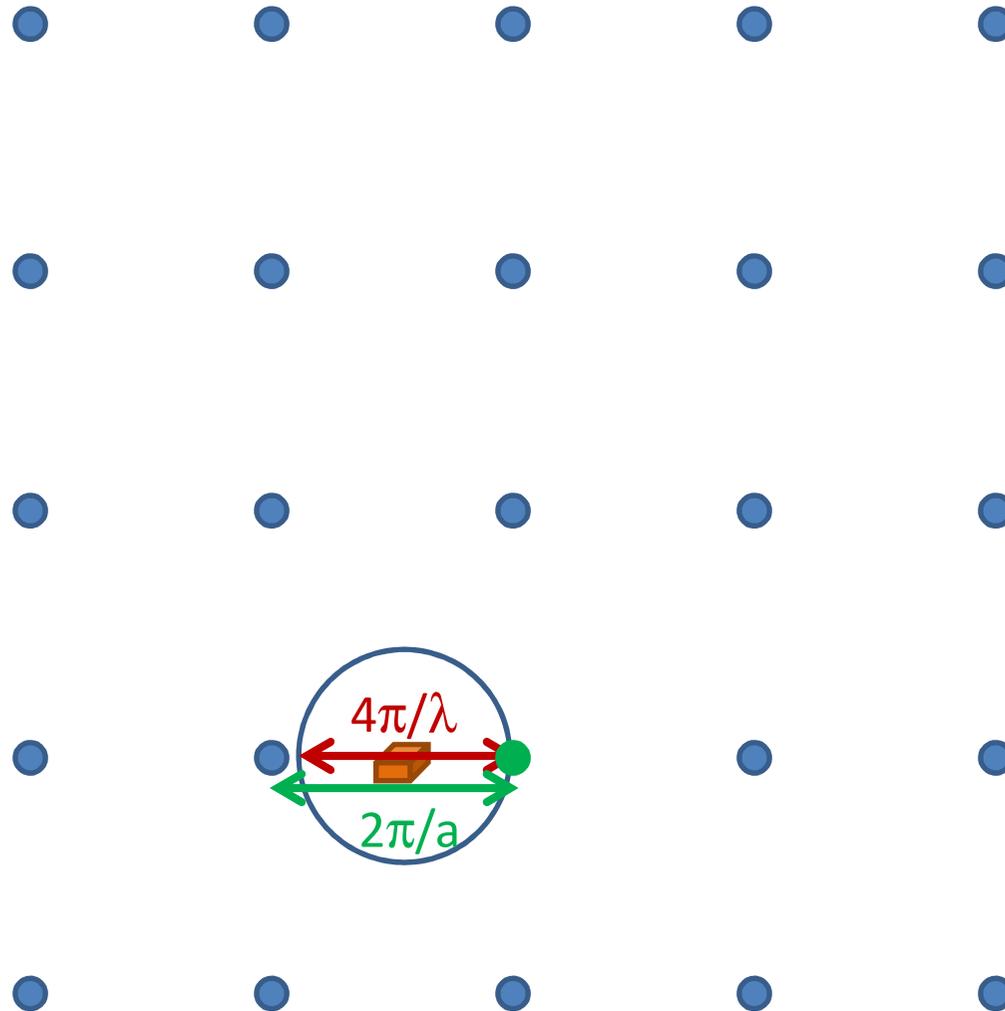
$a \sim 100\mu\text{m} \dots$

Que peut-on apprendre avec la construction d'Ewald?









Pour observer la diffraction d'un faisceau de longueur d'onde λ par un cristal de paramètre a il faut donc:

$$\frac{2\pi}{a} < \frac{4\pi}{\lambda}$$

Condition de diffraction:

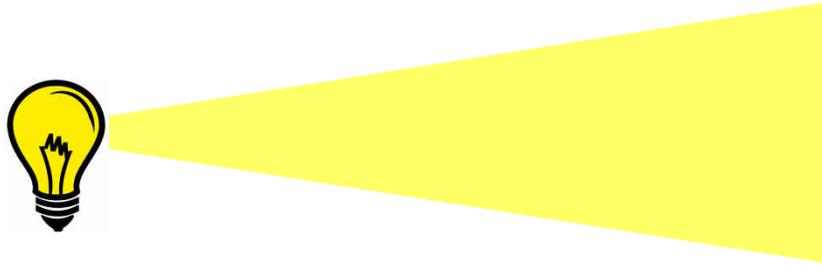
$$\lambda < 2a$$

~~$$\lambda < a$$~~

Quelle longueur
doit-on comparer
à a ??

D'où vient la cohérence d'un faisceau ?

Qu'est-ce qui limite la validité de la sommation des amplitudes lumineuses?

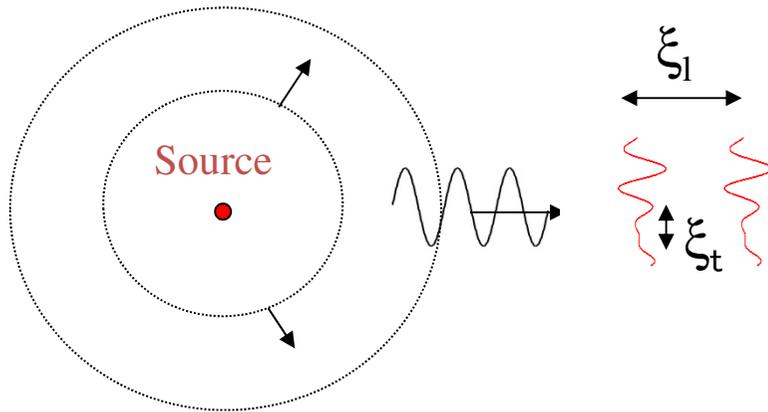


La Monochromaticité d'un faisceau



Longueur de cohérence longitudinale

ξ_l

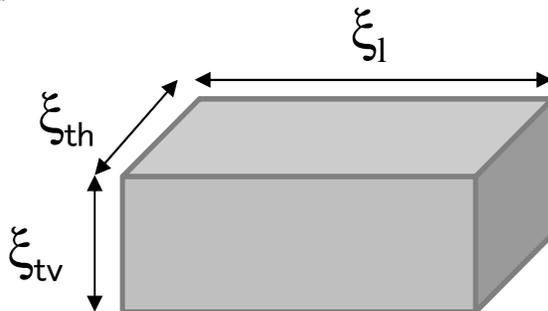


L'ouverture numérique de la source en un point



Longueur de cohérence transverse

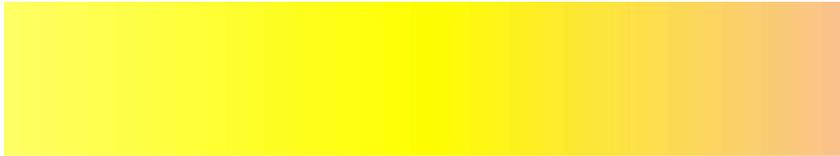
ξ_t



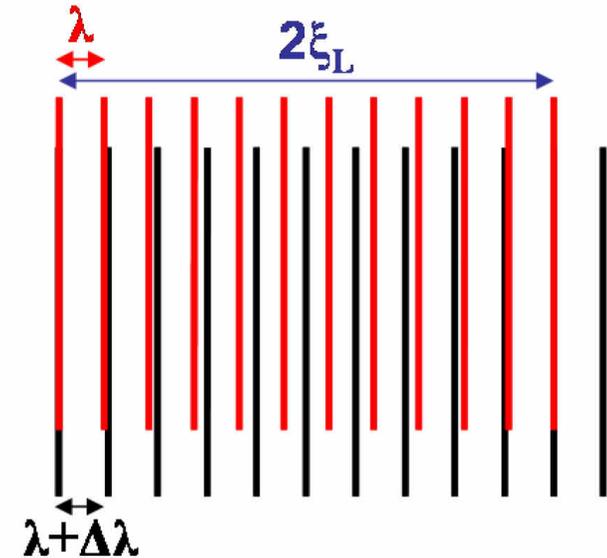
Volume de cohérence

Longueur de cohérence longitudinale (temporelle)

Onde plane de largeur spectrale $\Delta\lambda$ autour de λ



ξ_L : distance sur laquelle deux faisceaux ayant une différence de longueur d'onde $\Delta\lambda$ seront en antiphasse



$$2\xi_L = (N + 1)\lambda = N(\lambda + \Delta\lambda)$$

$$\rightarrow 2\xi_L = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda} + \lambda \sim \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$$

$$\rightarrow N = \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$$

si $\Delta\lambda \ll \lambda$

$$2\xi_L = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$$

Proportionnel à λ , inversement proportionnel à $\Delta\lambda/\lambda$

\rightarrow Plus λ est petit, plus ξ_L est petit...

Longueur de cohérence transverse (spatiale)

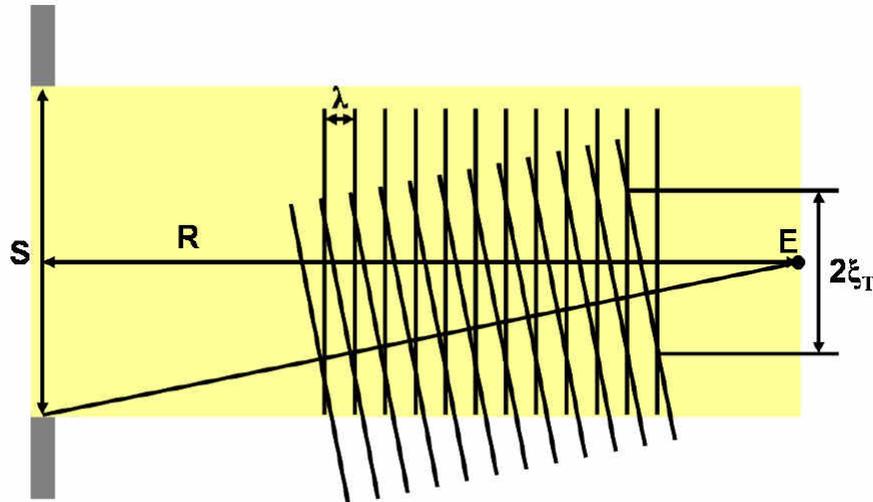
Source étendue
monochromatique



ξ_T : longueur transverse à \mathbf{k} pour laquelle deux faisceaux ayant une différence d'incidence α seront en antiphase

$$\operatorname{tg}(\alpha) = \frac{S}{R} = \frac{\lambda}{2\xi_T}$$

$$2\xi_T = \frac{\lambda R}{S}$$



$\frac{S}{R}$ Ouverture numérique de la source

Proportionnel à λ
Proportionnel à la distance source - échantillon
Inversement proportionnel à la taille de source

Lien entre le volume de cohérence et les volumes échantillon

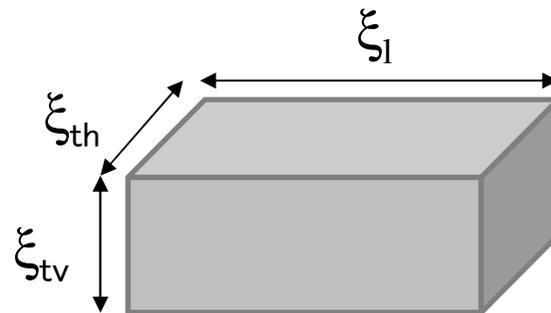
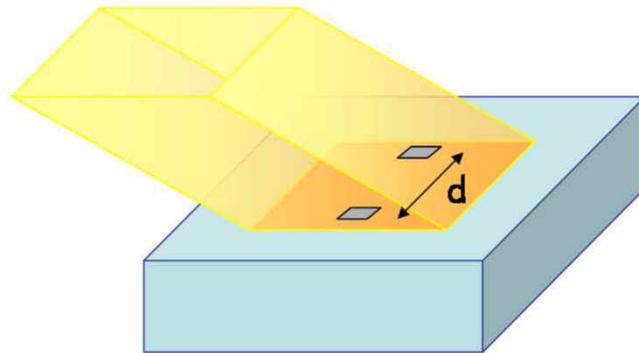
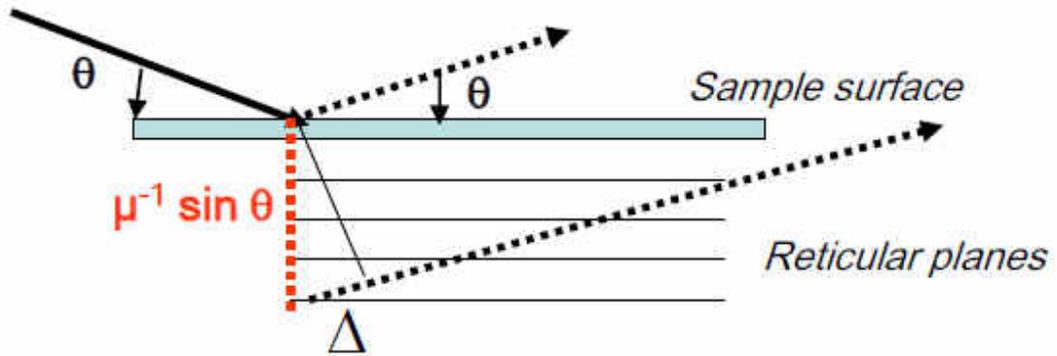
$$2\xi_L = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$$

$$2\xi_T = \frac{\lambda R}{S}$$

Interférences possibles si:

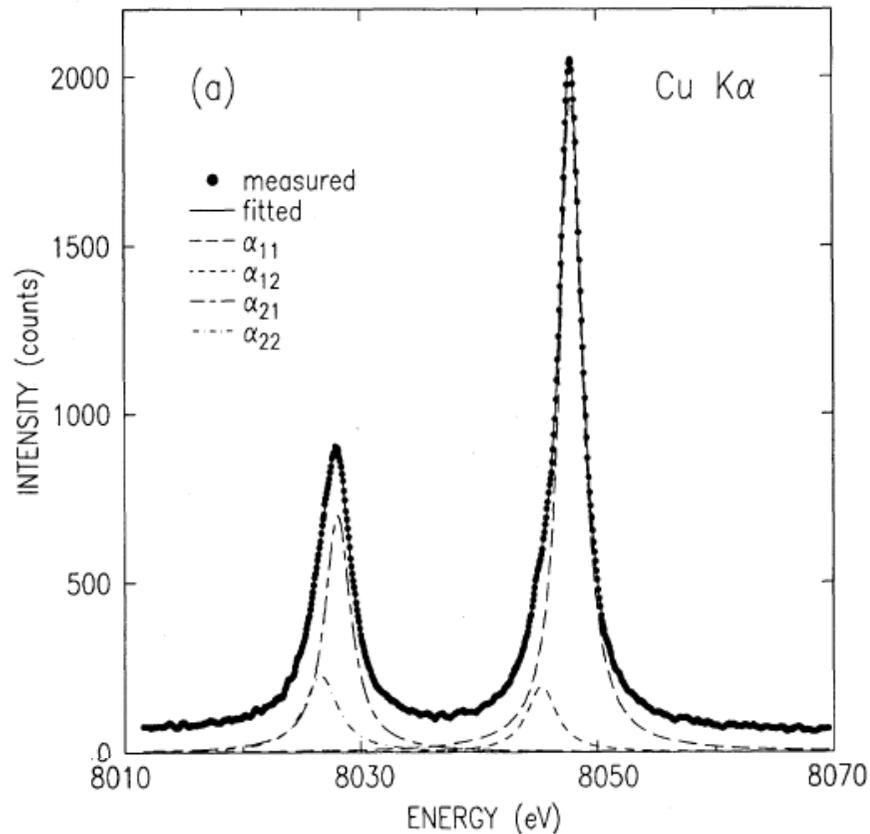
$$\Delta = 2\mu^{-1}\sin^2\theta < \xi_L$$

$$d < \lambda$$



Un peu de pragmatisme: la cohérence en chiffres...

Avec des λ plus de 1000 fois inférieurs aux longueurs d'onde visible quelles valeurs obtient-on?



En laboratoire avec une source monochromatique (anticathode de cuivre):

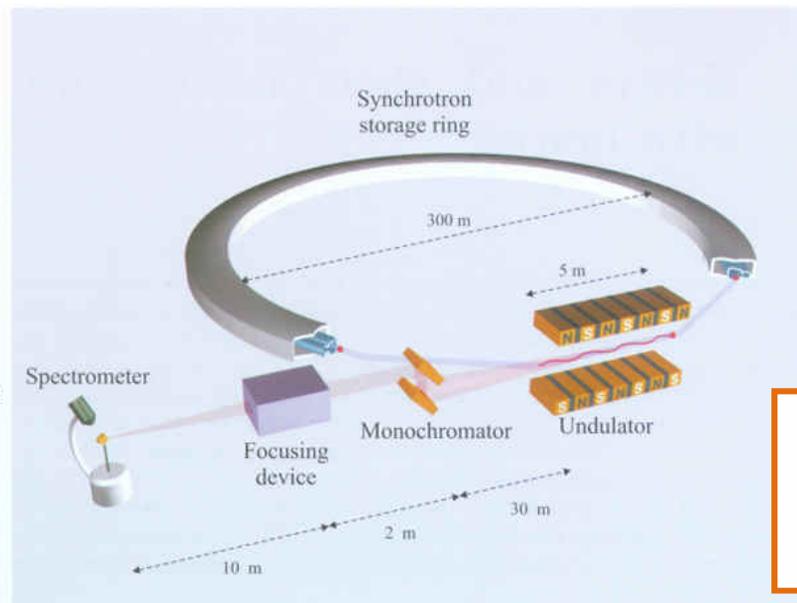
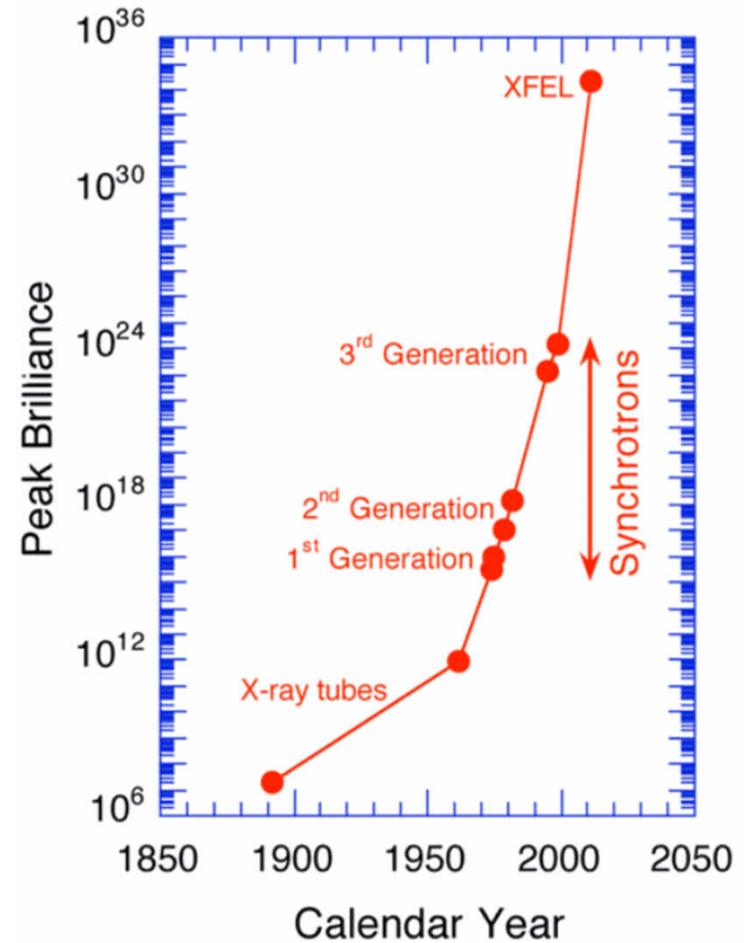
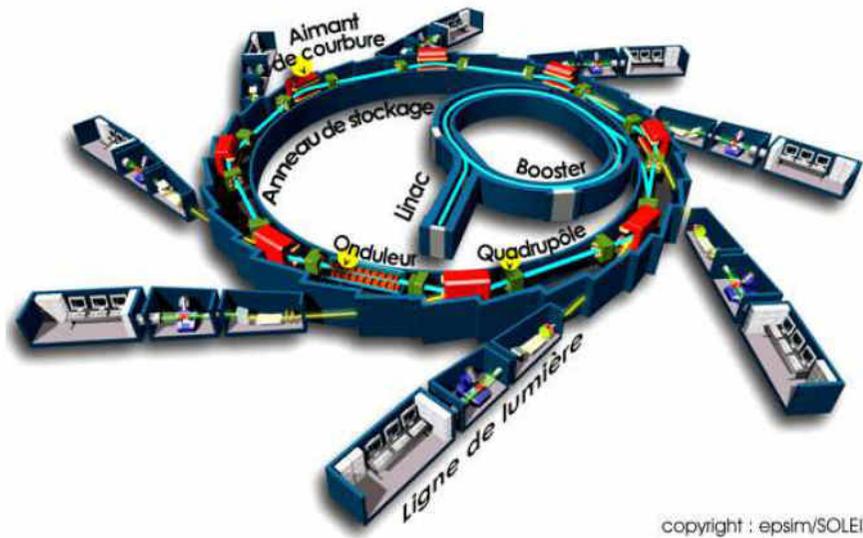
$$\Delta E/E = 3/8000 = 3.7 \cdot 10^{-4} \rightarrow \xi_L \sim 400 \text{ nm}$$

Avec une source monochromatique microfoyer de laboratoire: $S = 1\text{mm}$; distance: 1m

$$\xi_T = 1.5 \cdot 10^{-10} / 10^{-3} \rightarrow \xi_T = 150 \text{ nm}$$

Possible, mais combien de photons reste-t-il dans une ouverture de $150 \times 400\text{nm}$?

Gagner en flux cohérent grâce aux grands instruments



$$2\xi_T = \frac{\lambda R}{S}$$

On gagne sur :
S, R, et surtout en brillance
(faible émittance)

Avec une source onduleur de SOLEIL

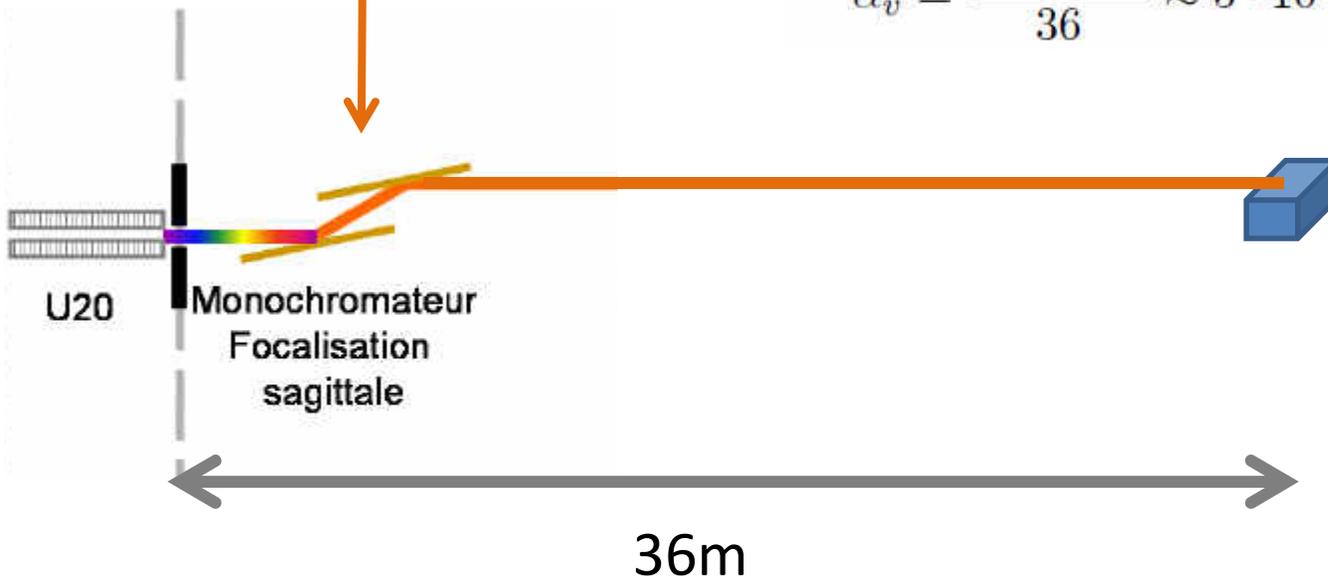
$$2\xi_L = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$$

Mono Si(111):
 $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 1,4 \cdot 10^{-4}$

$$2\xi_T = \frac{\lambda R}{S}$$

$$\alpha_h = \frac{911 \cdot 10^{-6}}{36} \approx 2,53 \cdot 10^{-5} \text{ rad} = 25,3 \text{ } \mu\text{rad}$$

$$\alpha_v = \frac{19 \cdot 10^{-6}}{36} \approx 5 \cdot 10^{-7} \text{ rad} = 0,527 \text{ } \mu\text{rad}$$



A 8keV:

$$\xi_L = 0,5 \text{ } \mu\text{m}$$

$$\xi_{Th} = 6 \text{ } \mu\text{m}$$

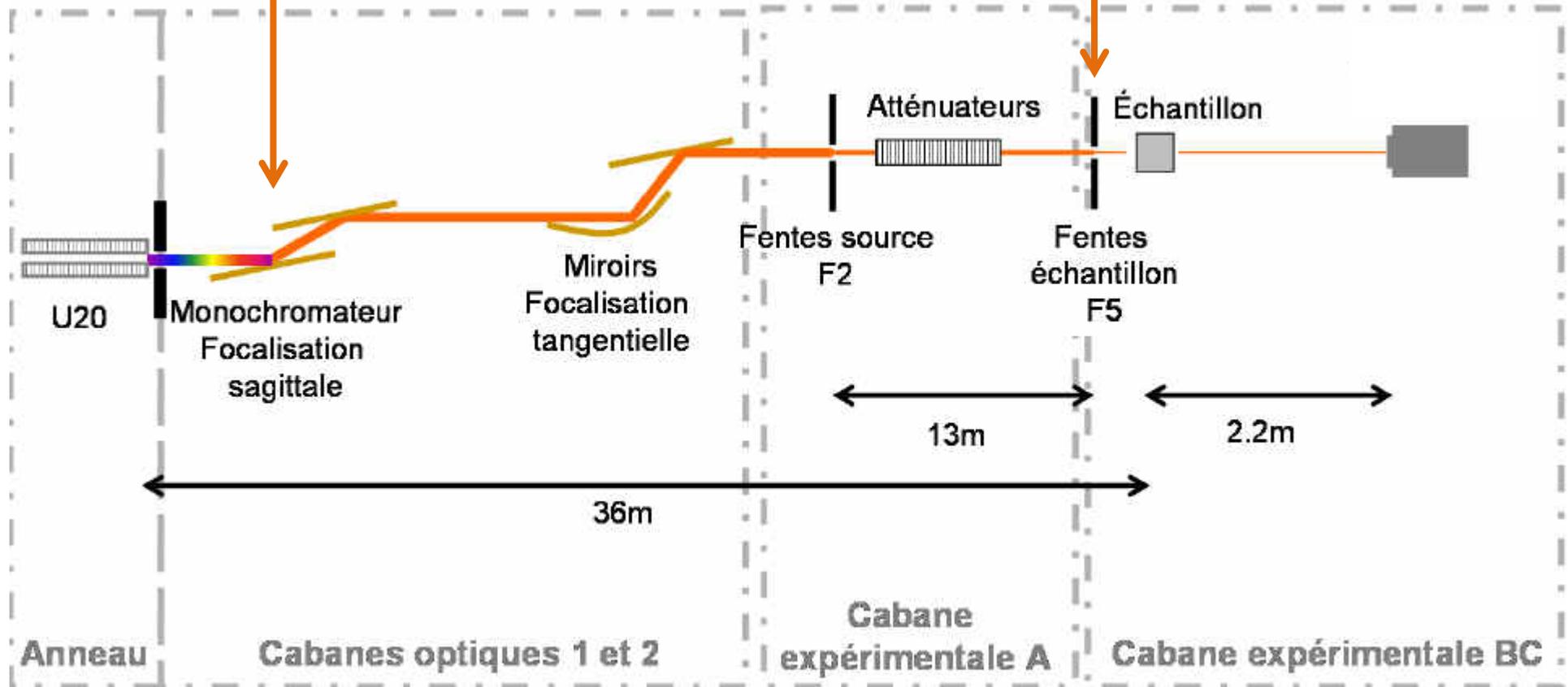
$$\xi_{Tv} = 280 \text{ } \mu\text{m}$$

Schéma de cohérence de la ligne CRISTAL de SOLEIL

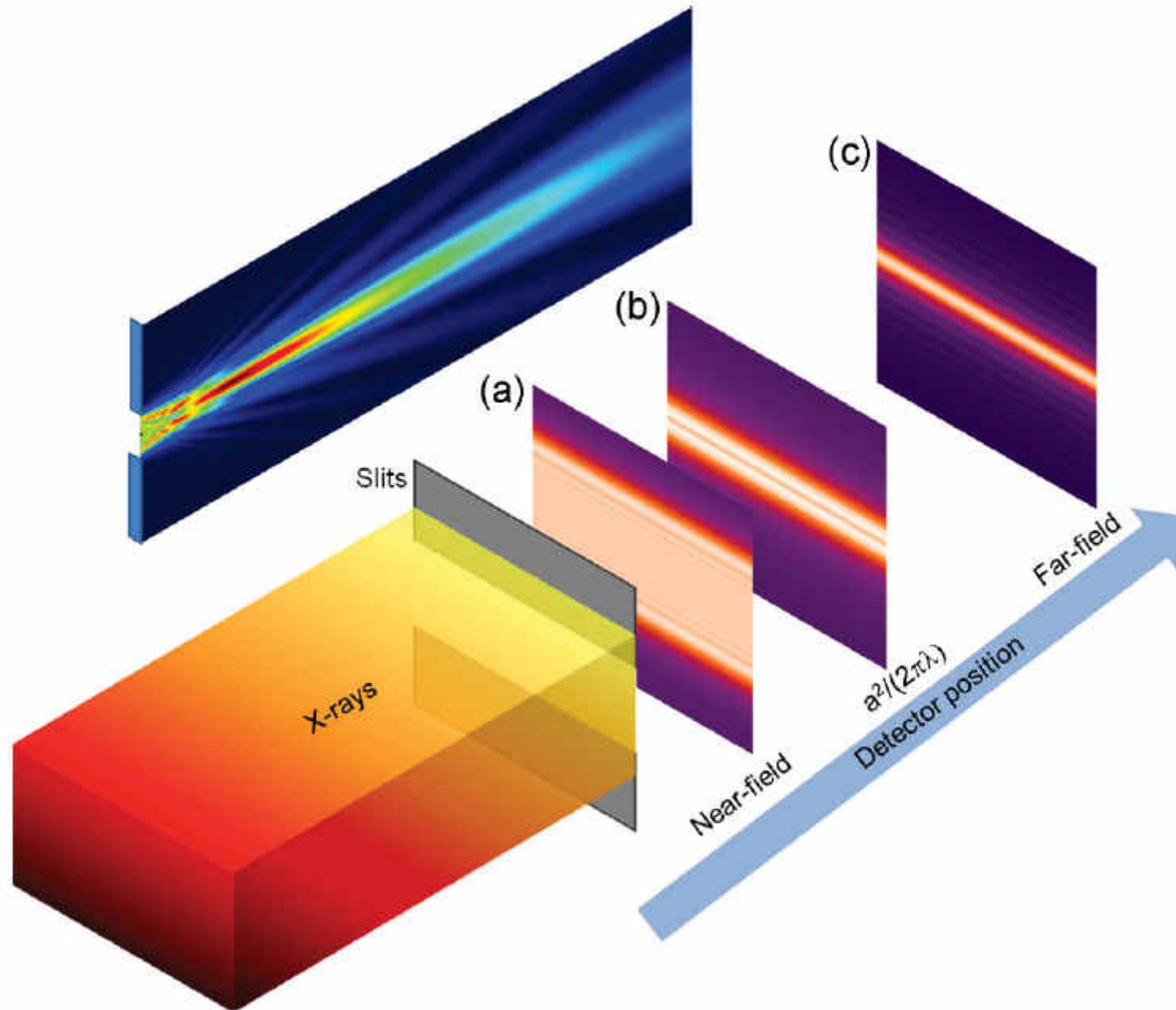
$$2\xi_L = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}$$

$$2\xi_T = \frac{\lambda R}{S}$$

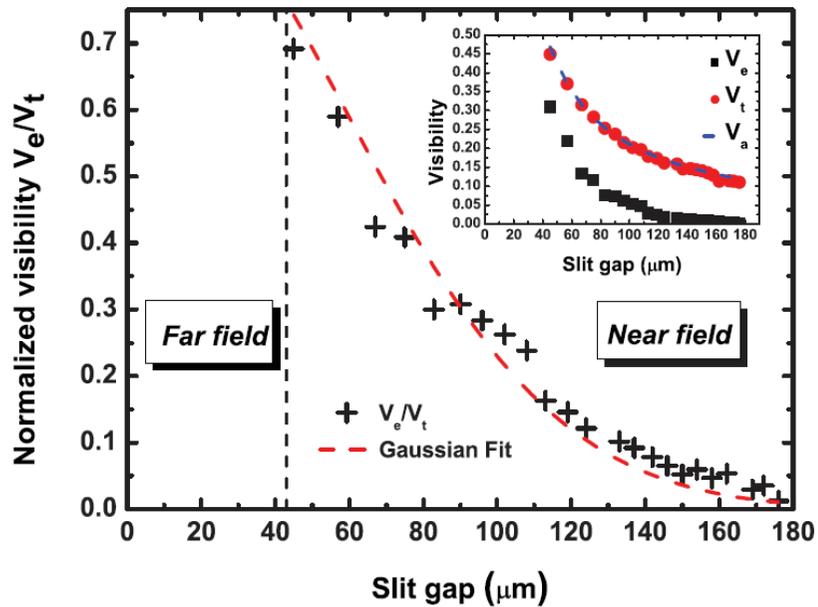
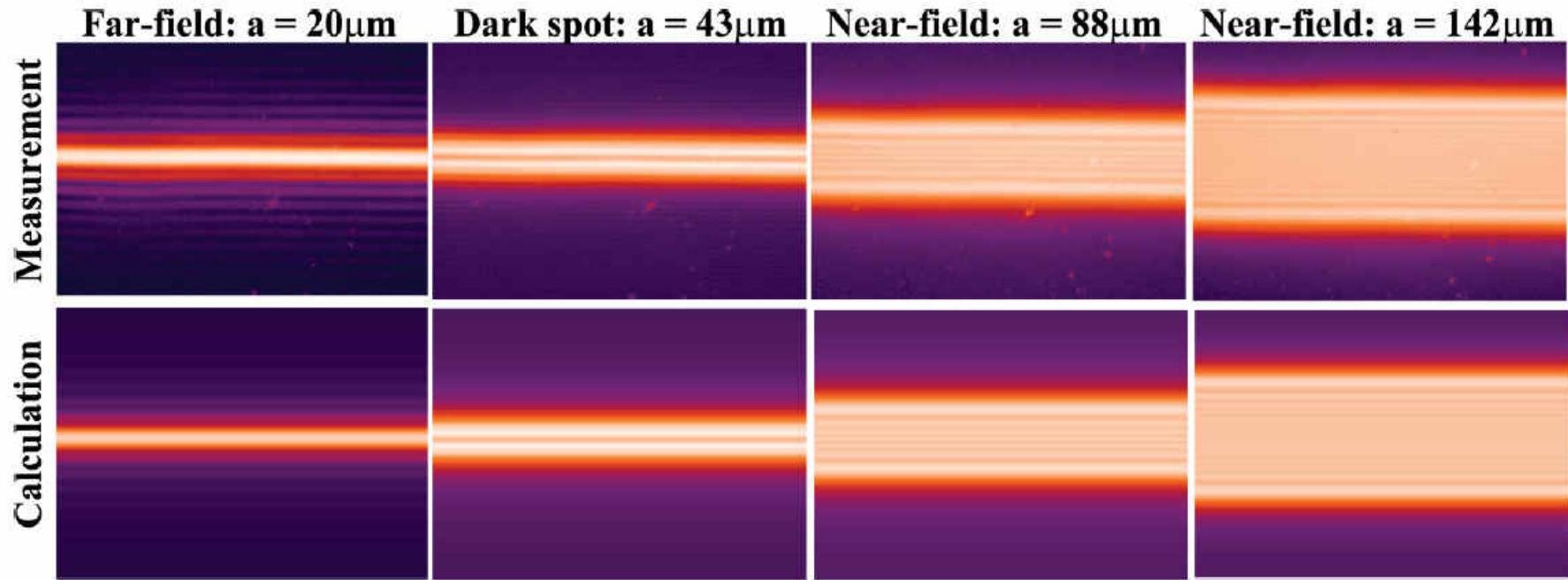
Avec une source secondaire:
 $\xi_{Th} = \xi_{Tv} \sim 20 \mu m$
 β proche de 100%



Mesure réelle sur la ligne CRISTAL de SOLEIL



Mesure de la visibilité en champ proche sur la ligne CRISTAL de SOLEIL

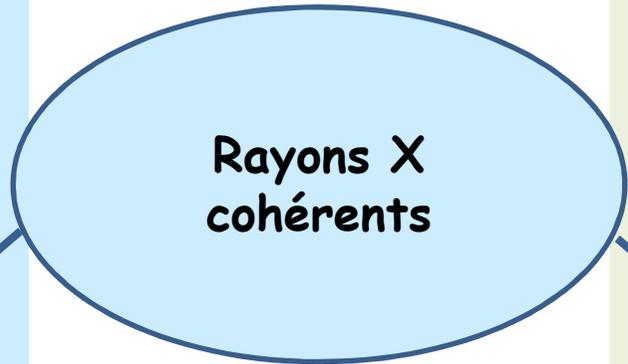


$$\frac{V_e}{V_t}(a) = e^{-\frac{a^2}{2\xi_{TF}^2}}$$

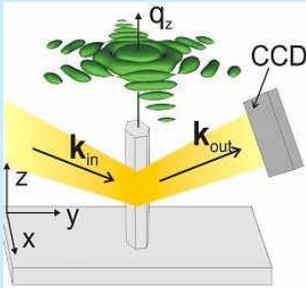
$$\xi_{TF} = 58 \pm 2 \mu\text{m}$$

V.L.R. Jacques et al, PRB 2012

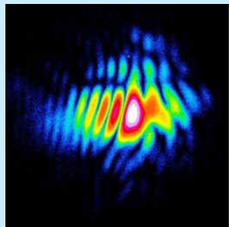
Plusieurs manières d'exploiter la cohérence des rayons X



Imagerie:
Reconstruction de la phase
(CDI, Ptychographie
Holographie)

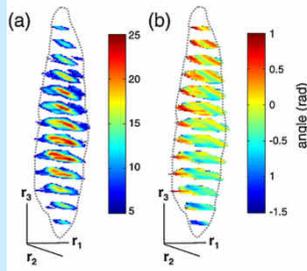


A. Diaz et al., *Phys. Rev. B* 79, 125324 (2009)



Réflexion de Bragg par un grain d'or de 500nm

N. Vaxelaire et al., *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res.* 268, 388 (2010)

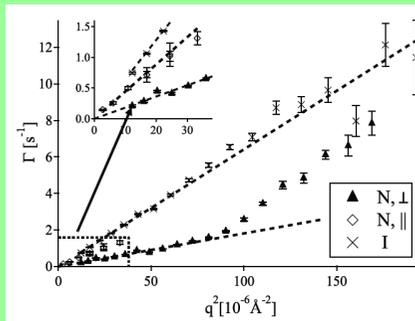
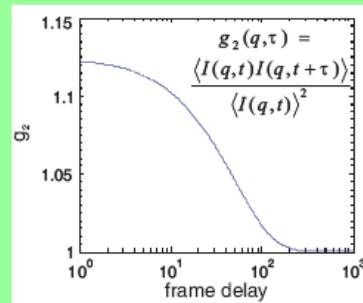


V. Chamard et al., *Phys. Rev. Lett.* 104, 165501 (2010)

→ Champ de déplacement

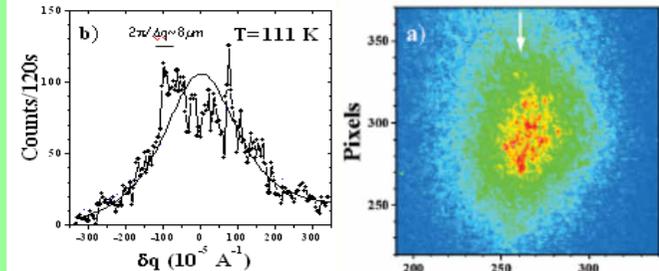
Rayons X cohérents

XPCS:
dynamique



A.S. Poulos, *J. Chem. Phys.* 132, 091101 (2010)

Étude directe des interférences



SrTiO₃

S. Ravy et al., *Phys. Rev. Lett.* 98, 105501

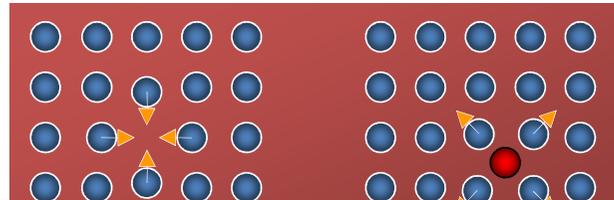
- Transitions de phase
- Défauts de phase

Classification des défauts par dimensionalité

Défauts topologiques: ne peuvent pas être supprimés par des déplacements atomiques

Dimension 0

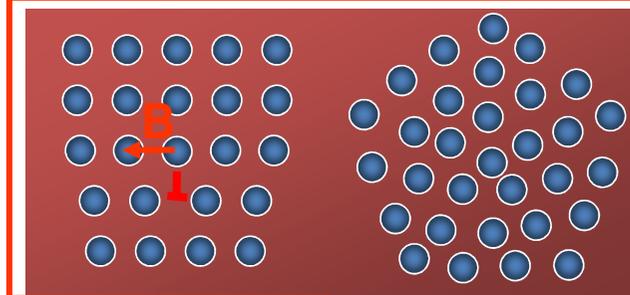
- Lacune
- Interstitiel



Observés aux grands angles

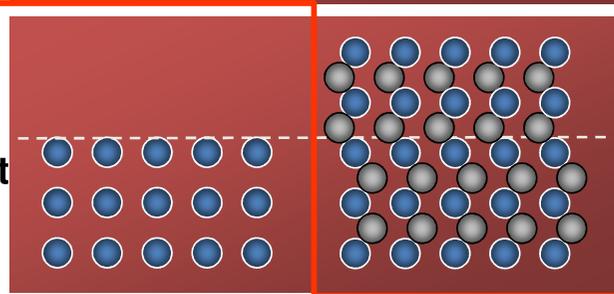
Dimension 1

- Dislocations
- Désinclinaisons



Dimension 2

- Surface
- Fautes d'empilement



Dimension 3

- Précipités



Diffusion diffuse

Diffusion de Huang

Pas d'étude en cohérence

Diffusion diffuse bien connue

Effets en cohérence

Dédoublément des pics de Bragg

Surface: tige de troncature
(aussi en diffraction cohérente)

Fautes d'empilement: tiges
+dédoublément des pics de Bragg

Etude en cohérence:

Takahashi et al.

Appl. Phys. Lett 90, 184105 (2007)

Effet d'une dislocation unique sur un Bragg en cohérent

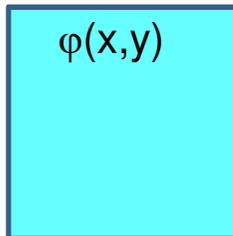
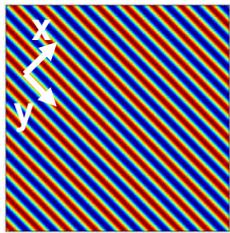
$$R(x, y, z) = \cos \left(\frac{2\pi x}{a} + \varphi(x, y) \right)$$

Constantes élastiques

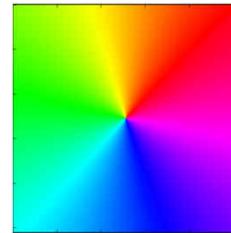
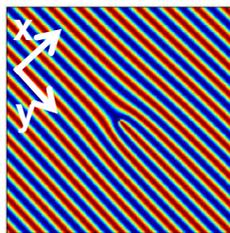
Position de la ligne

$$\varphi(x, y) = -\frac{\pi}{2} * \text{sgn}(y - y_0) + \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{\frac{K_y}{K_x}} (x - x_0)}{y - y_0} \right)$$

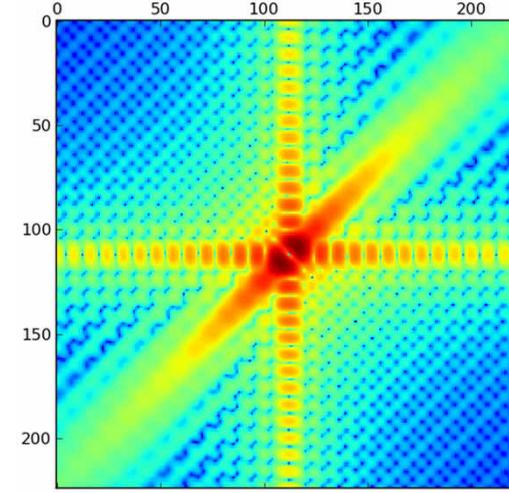
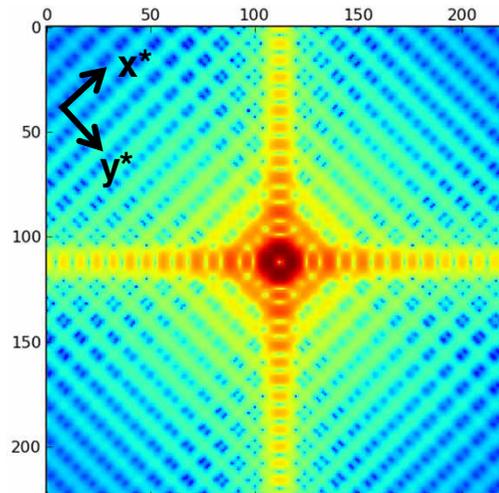
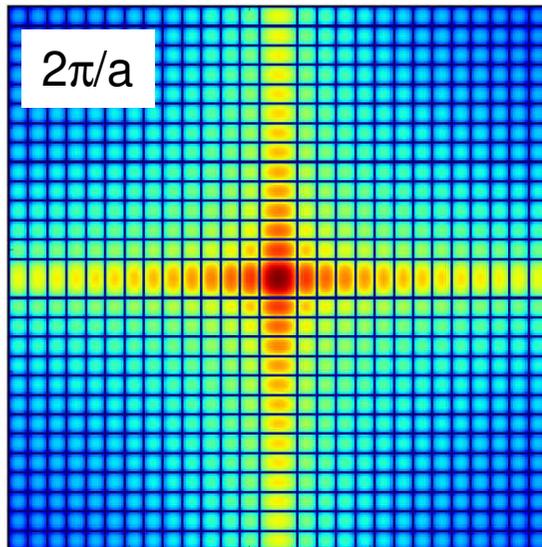
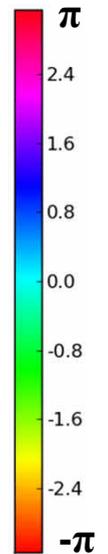
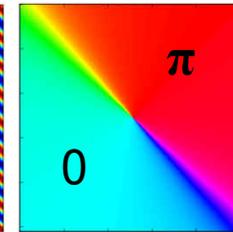
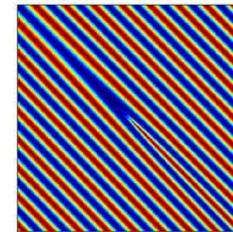
Espace réel



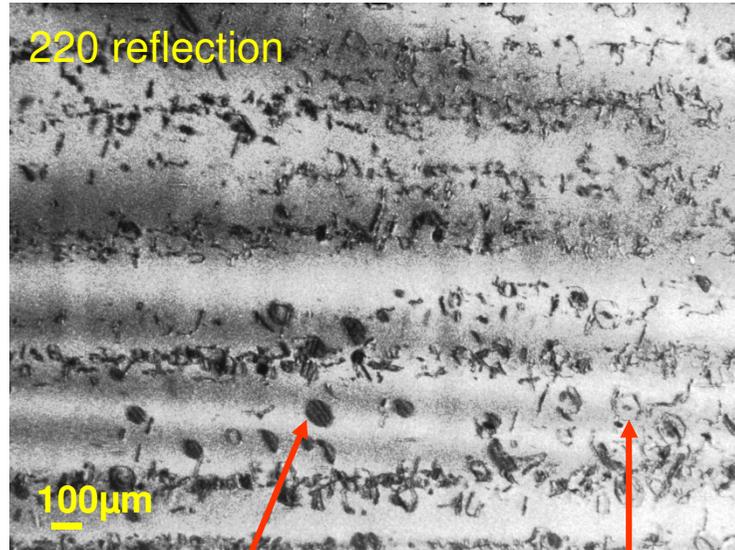
$K_y/K_x = 1$



$K_y/K_x = 100$

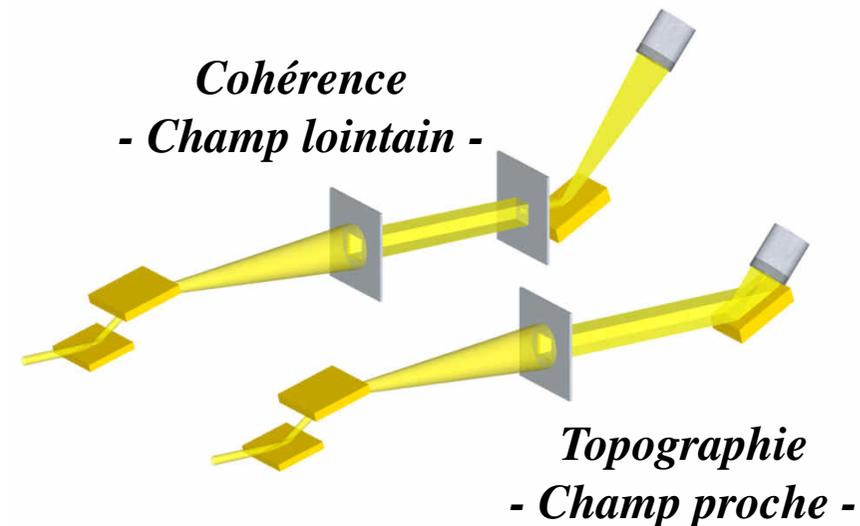
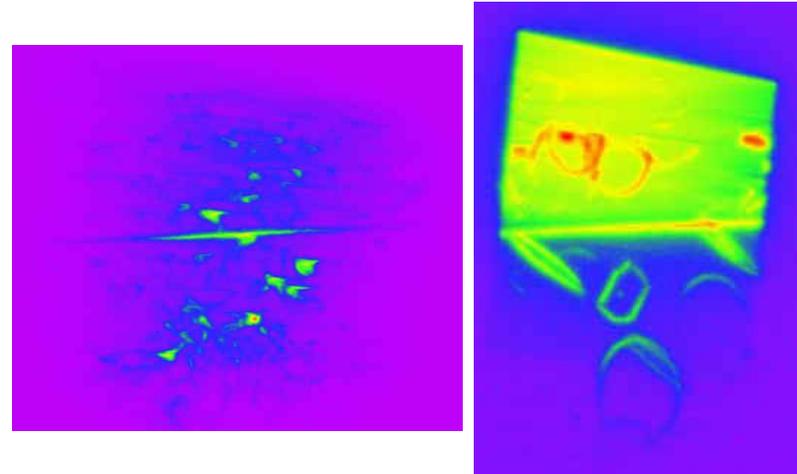


Des boucles de dislocation dans un échantillon de Si particulier



Dislocation partielle avec faute d'empilement Boucle prismatique

Préparation échantillon:
Croissance sous O₂
Recuit 35h sous O₂
Concentration défauts: 10¹⁸ cm⁻³



Imagerie directe de la ligne de dislocation à l'aide d'un faisceau cohérent

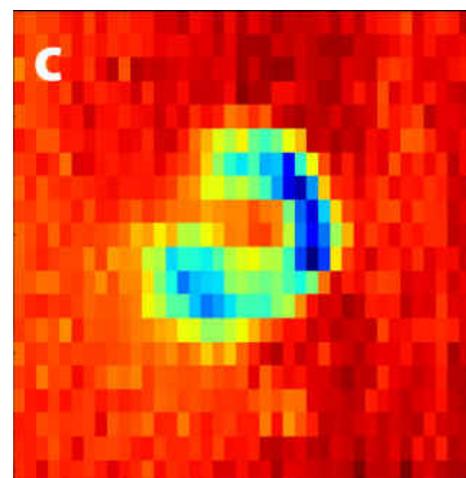
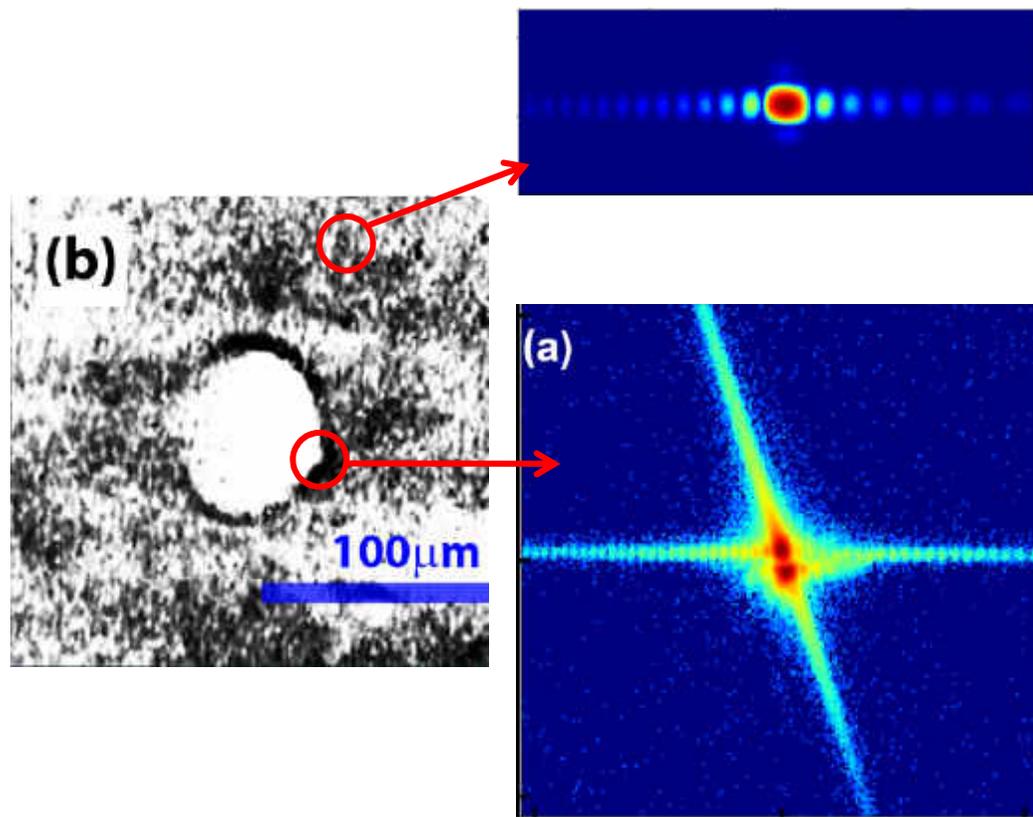
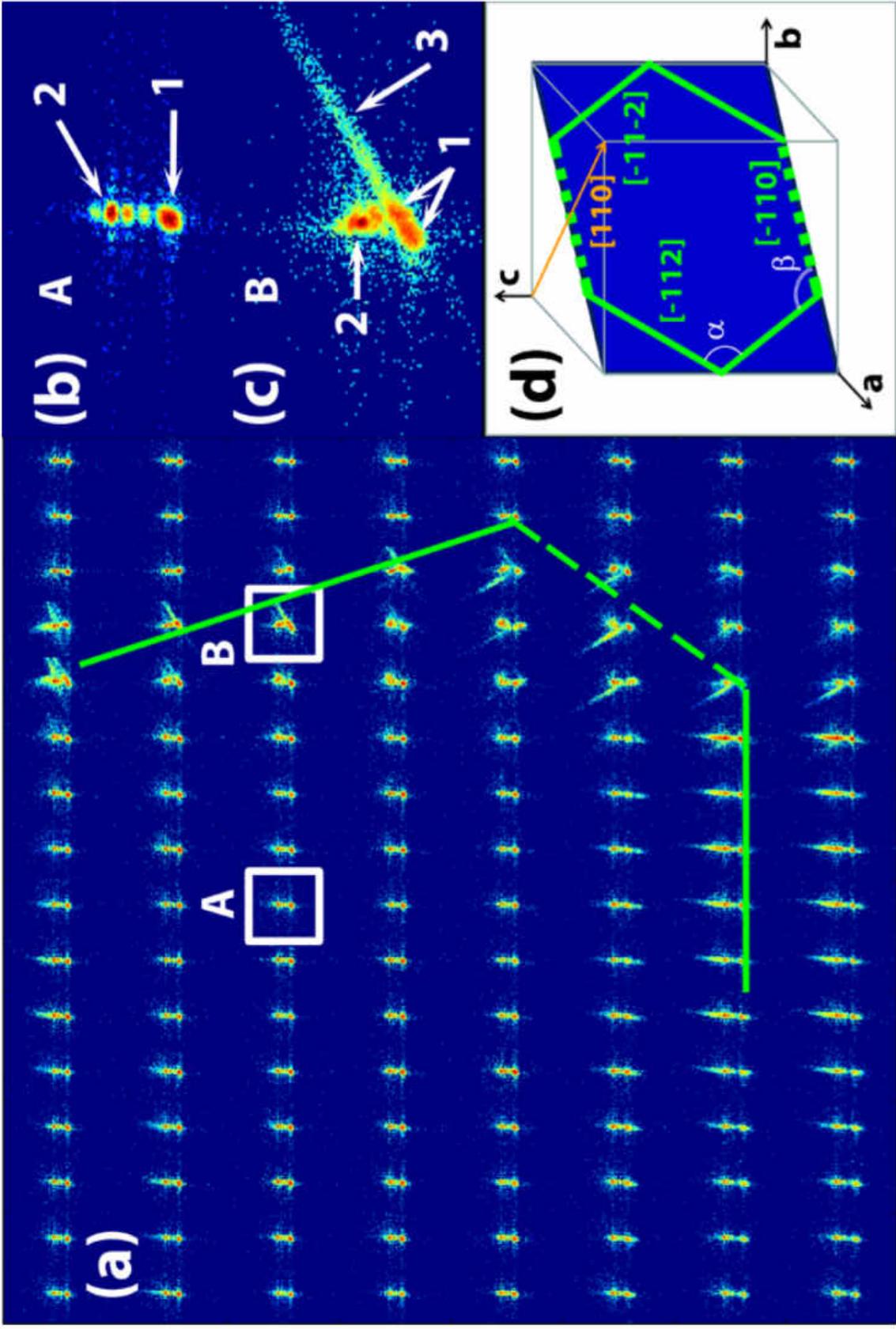
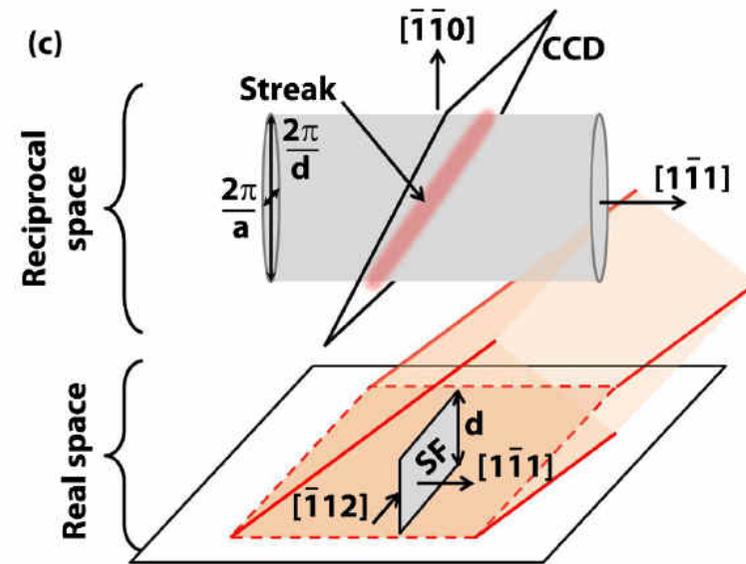
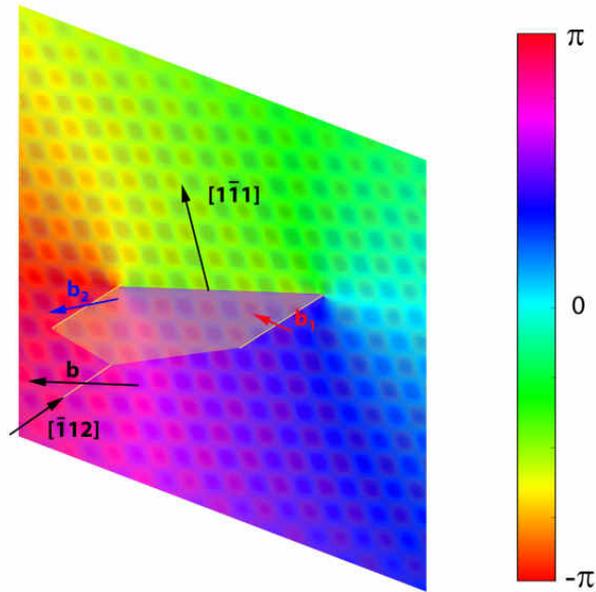


Image construite en prenant l'intensité au centre du Bragg en chaque point de l'échantillon
Résolution: 5 μm



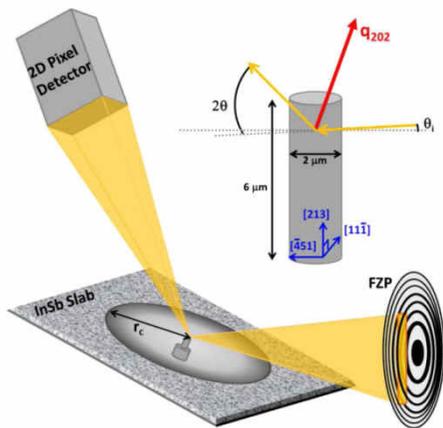
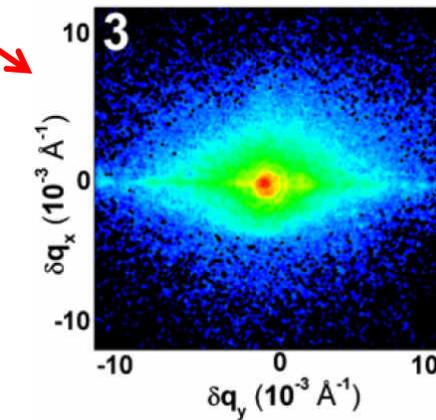
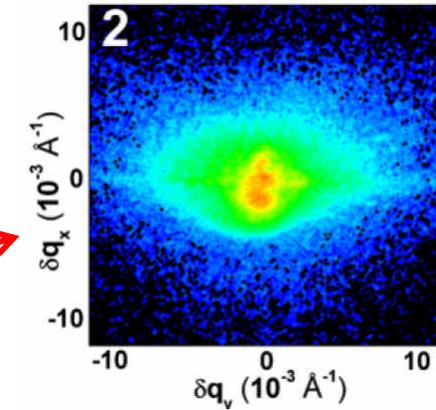
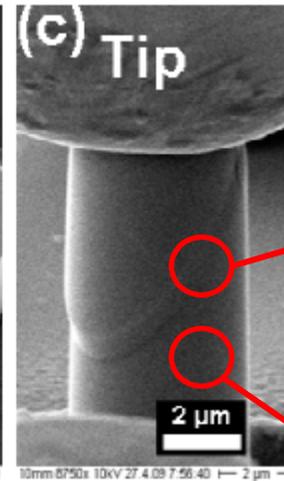
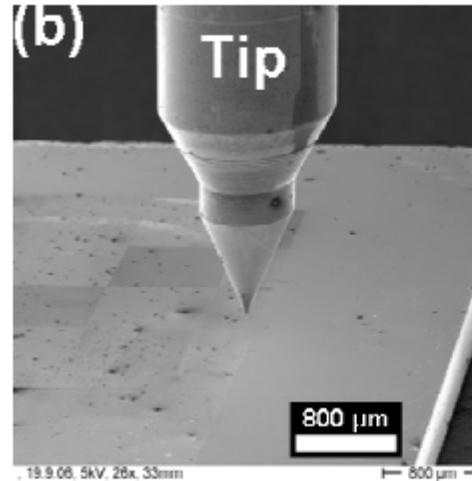
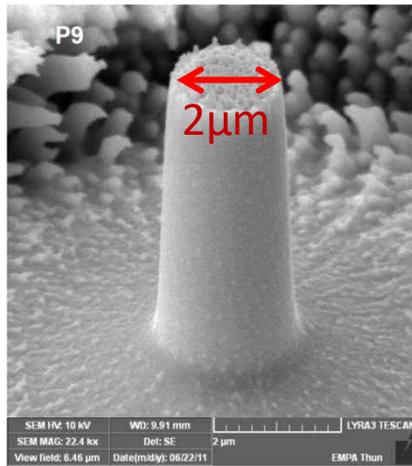
Mise en évidence d'une dissociation de grande taille



$d \sim 500 \text{ nm}$

Cas de plusieurs défauts: fautes d'empilement dans des micropiliers de InSb déformés plastiquement

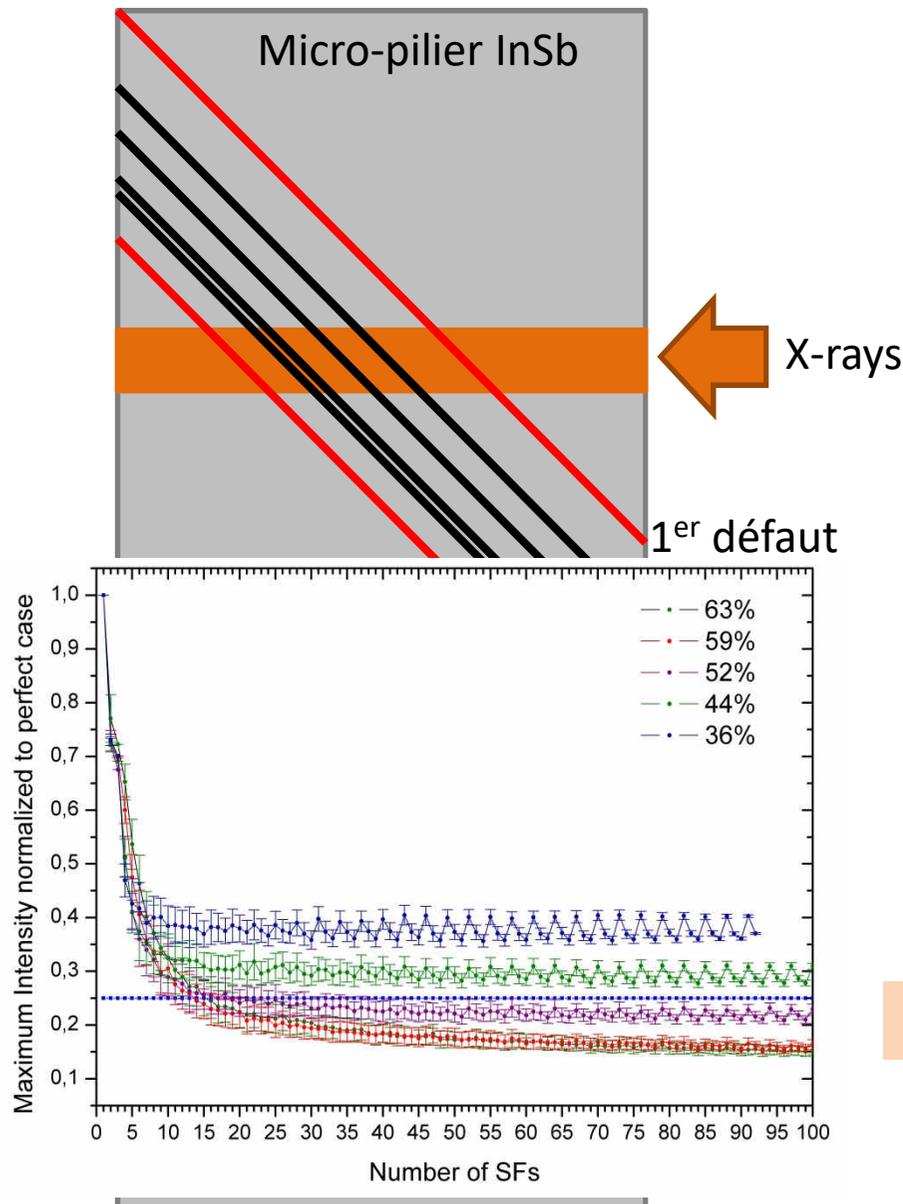
Micro-piliers de InSb



Taille du faisceau X: 200x500 nm
(focalisation avec Fresnel Zone Plates)

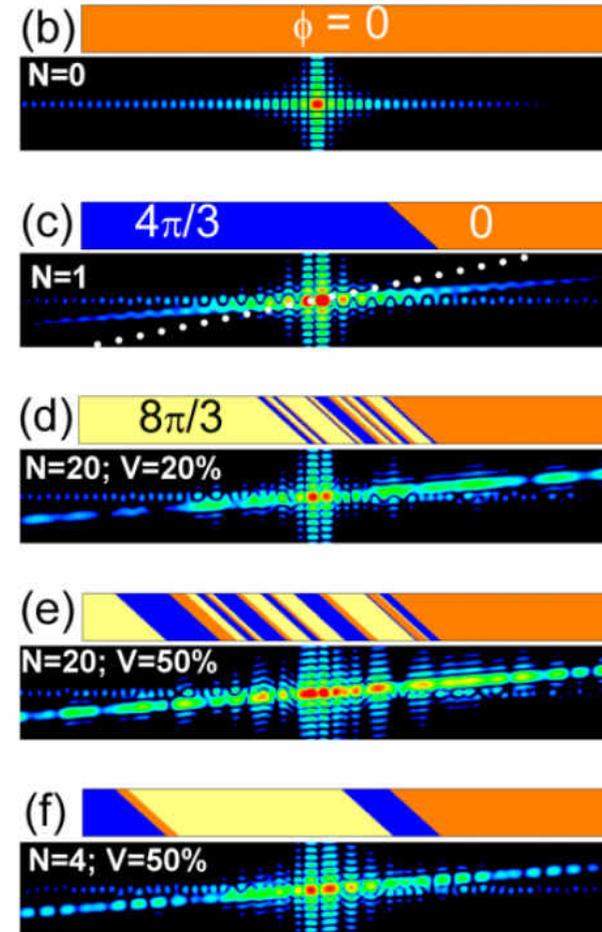
ID01, ESRF, France

Calcul des configurations possibles



Phase

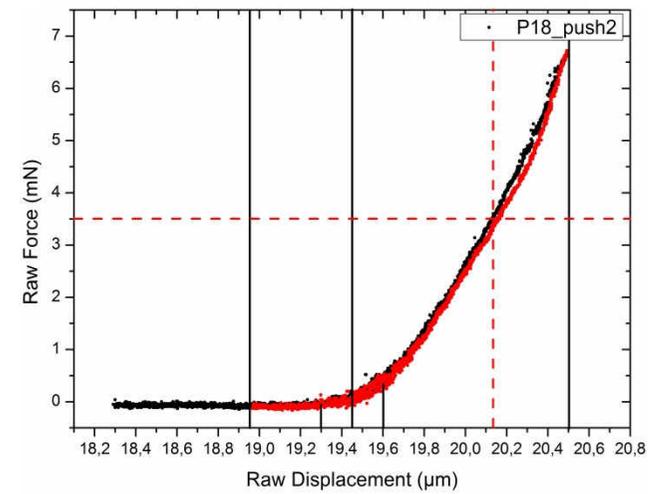
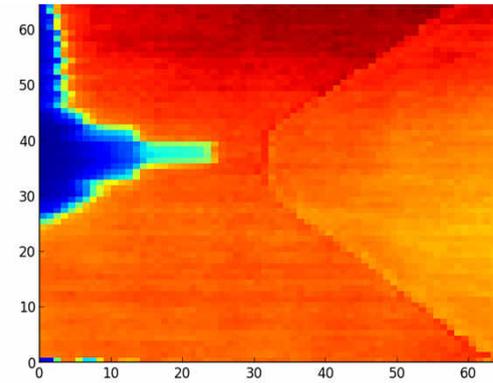
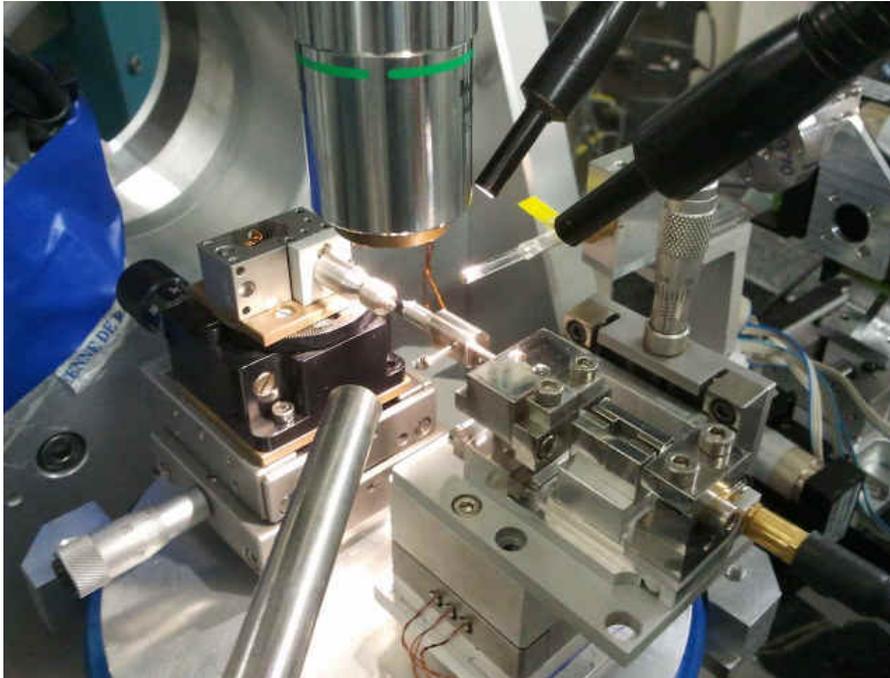
- $8\pi/3$
- $4\pi/3$
- 0



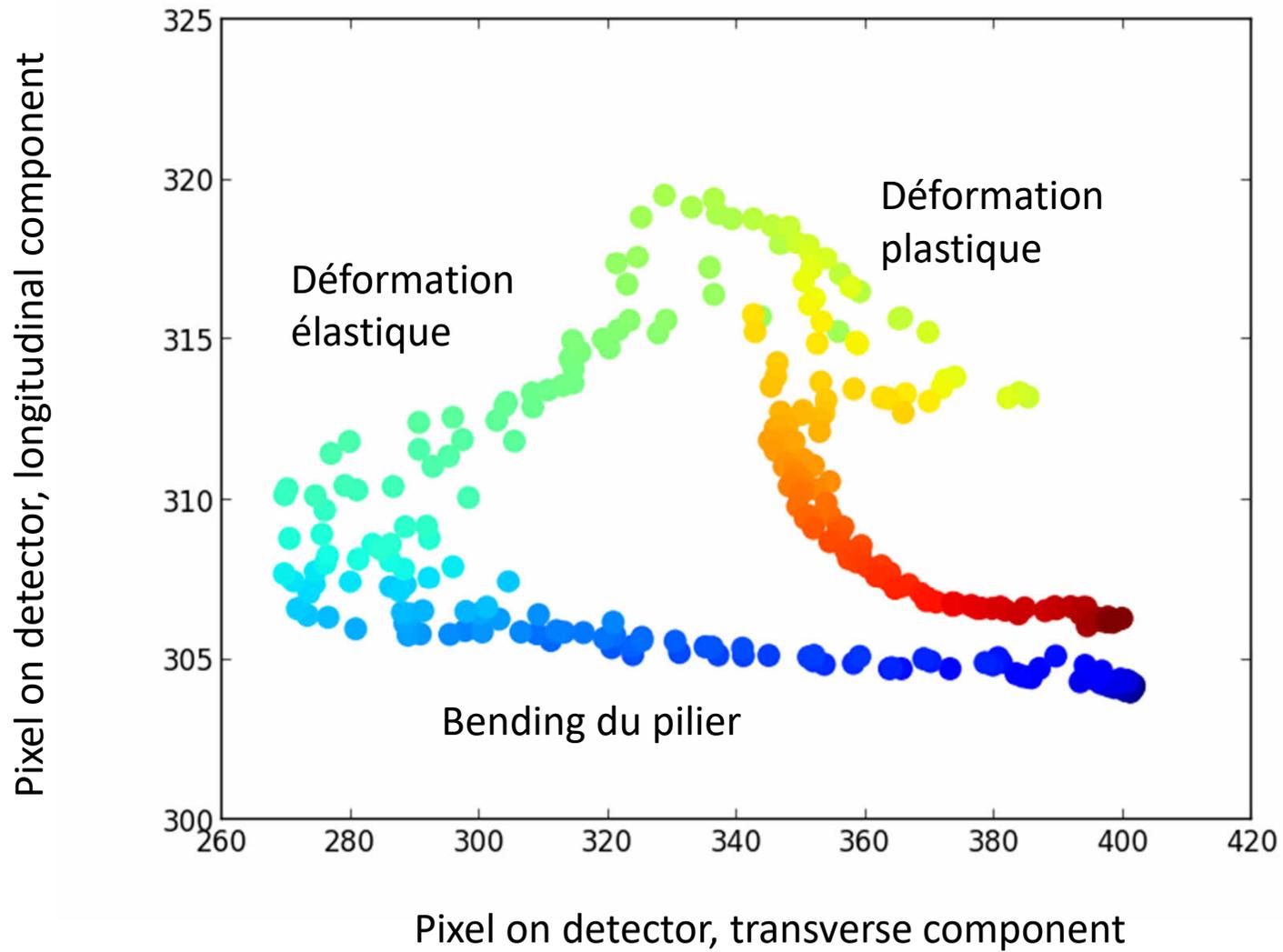
Configuration la plus probable : N=15; V=50%

V. Jacques et al. PRL 111, 065503 (2013)

Etude de la déformation de micropiliers de InSb in-situ



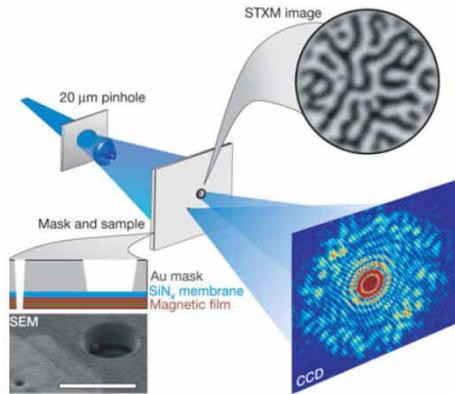
Déformations élastiques et plastiques suivies in-situ



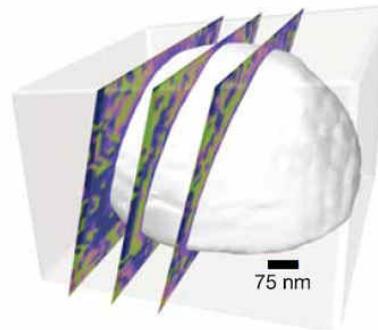
L'imagerie sans lentille grâce aux faisceaux cohérents

Principe: retrouver la phase perdue lors de la mesure...
Plusieurs techniques...

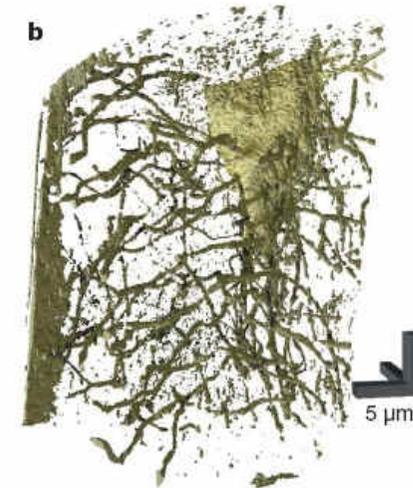
Holographie



Imagerie par Diffraction Cohérente Coherent Diffraction Imaging (CDI)



Ptychographie



Ces techniques peuvent être réalisées:

- en transmission près du centre de l'espace réciproque: imagerie de la densité locale
- En diffraction aux grands angles : intervention du champ de déformation local

$$A(\mathbf{q}) = \sum_n F_n(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n}$$

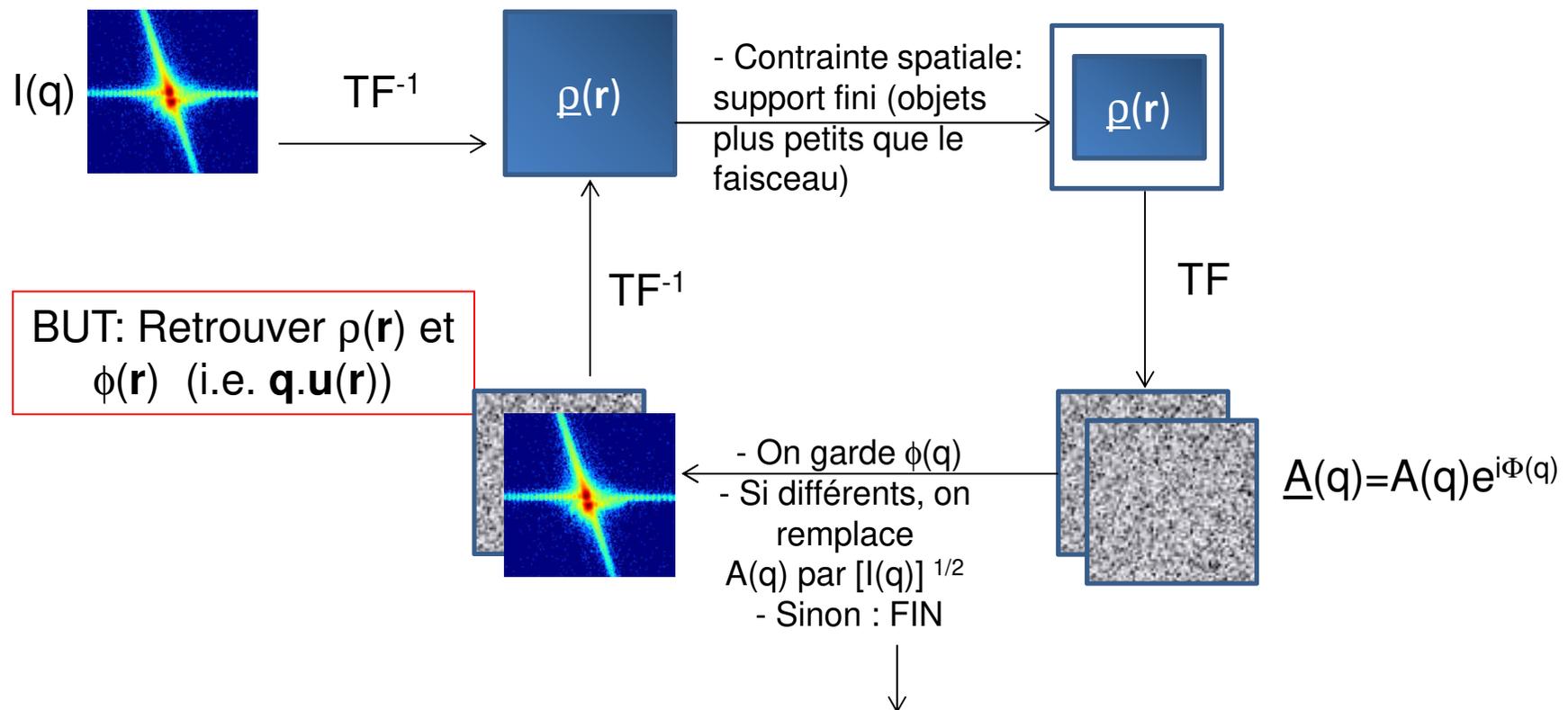
$$\mathbf{r}_n = \mathbf{r}_0 + \mathbf{u}_n$$

$$A(\mathbf{q}) = \sum_n F_n(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{u}_n}$$

Algorithmes de reconstruction de phase pour le CDI

Retrouver la phase perdue lors de la mesure à l'aide d'un algorithme effectuant des TF et TF⁻¹ en boucle, jusqu'à ce qu'il converge vers une solution, en appliquant des contraintes dans l'espace réel et dans l'espace de Fourier.

Coherent Diffraction Imaging (CDI): algorithme de reconstruction de la phase

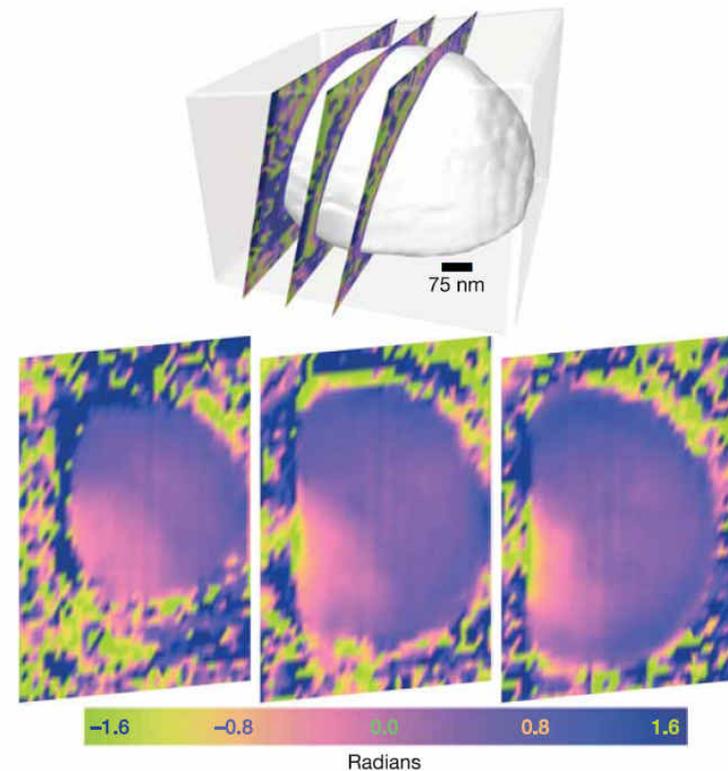
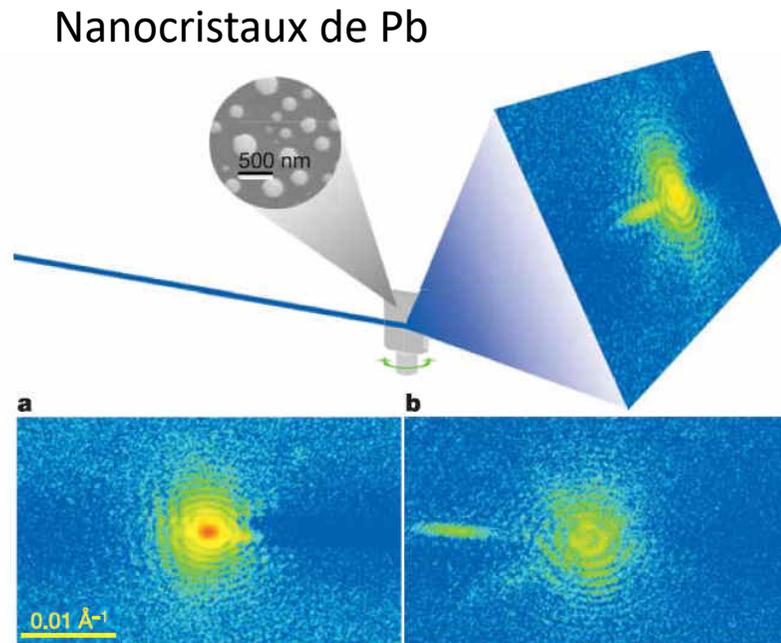


CDI en condition de Bragg: accès au champ de déformation

Three-dimensional mapping of a deformation field inside a nanocrystal

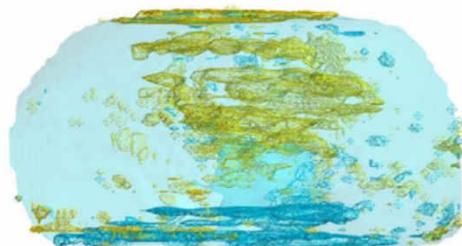
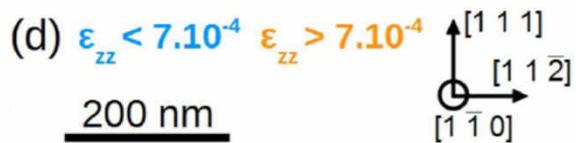
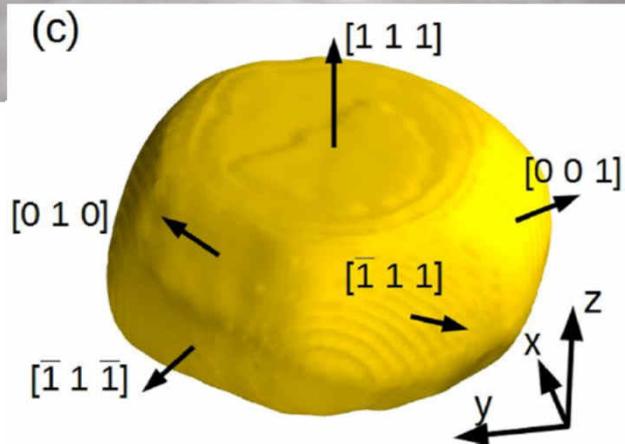
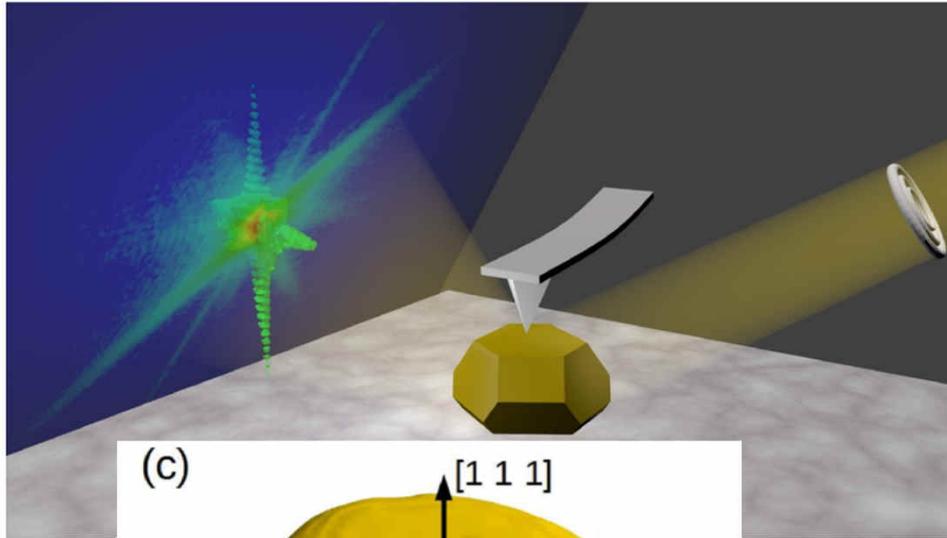
Mark A. Pfeifer^{1†}, Garth J. Williams^{1†}, Ivan A. Vartanyants^{1†}, Ross Harder¹ & Ian K. Robinson^{1†}

Reconstruction de la phase projetée sur la direction des plans du Bragg

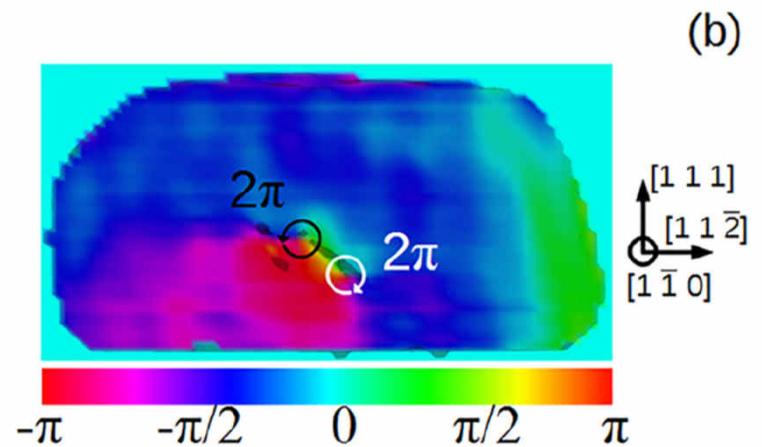
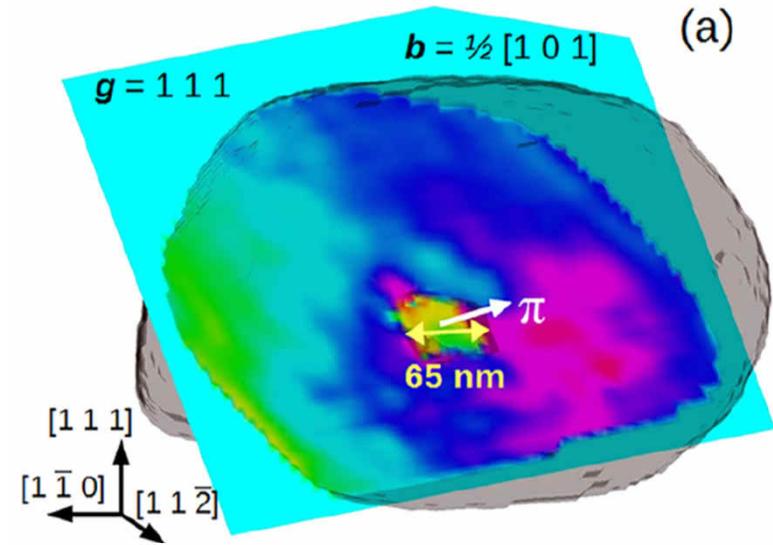


M.A. Pfeifer et al., Nature 442, 63 (2006)

Une boucle de dislocation apparaissant sous contrainte

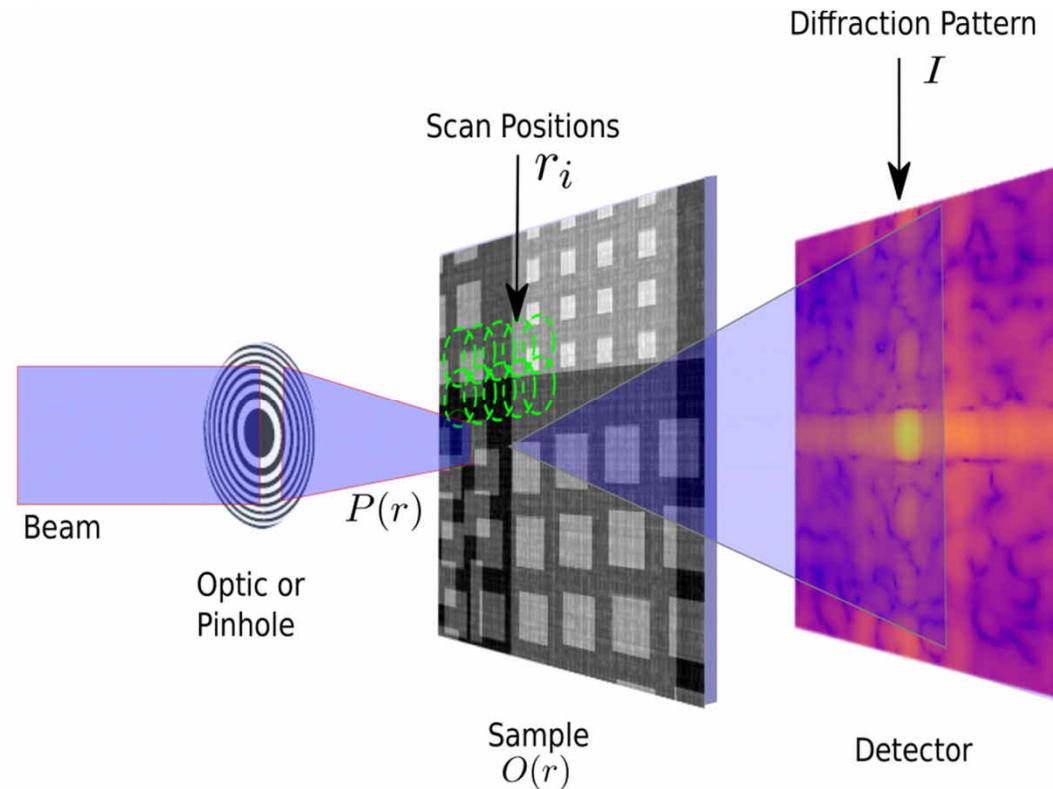


Force appliquée: 560 nN



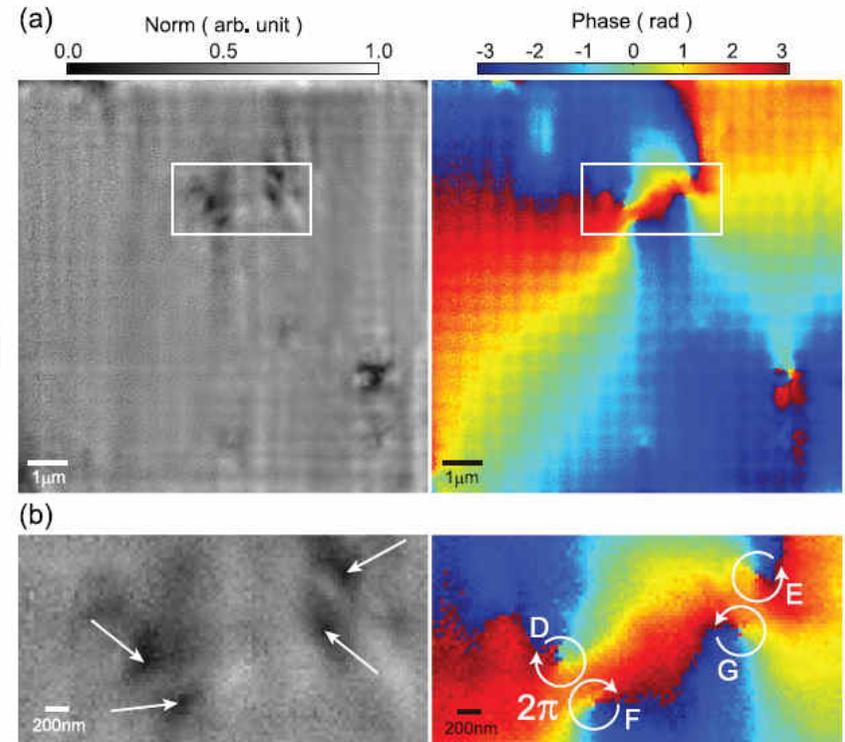
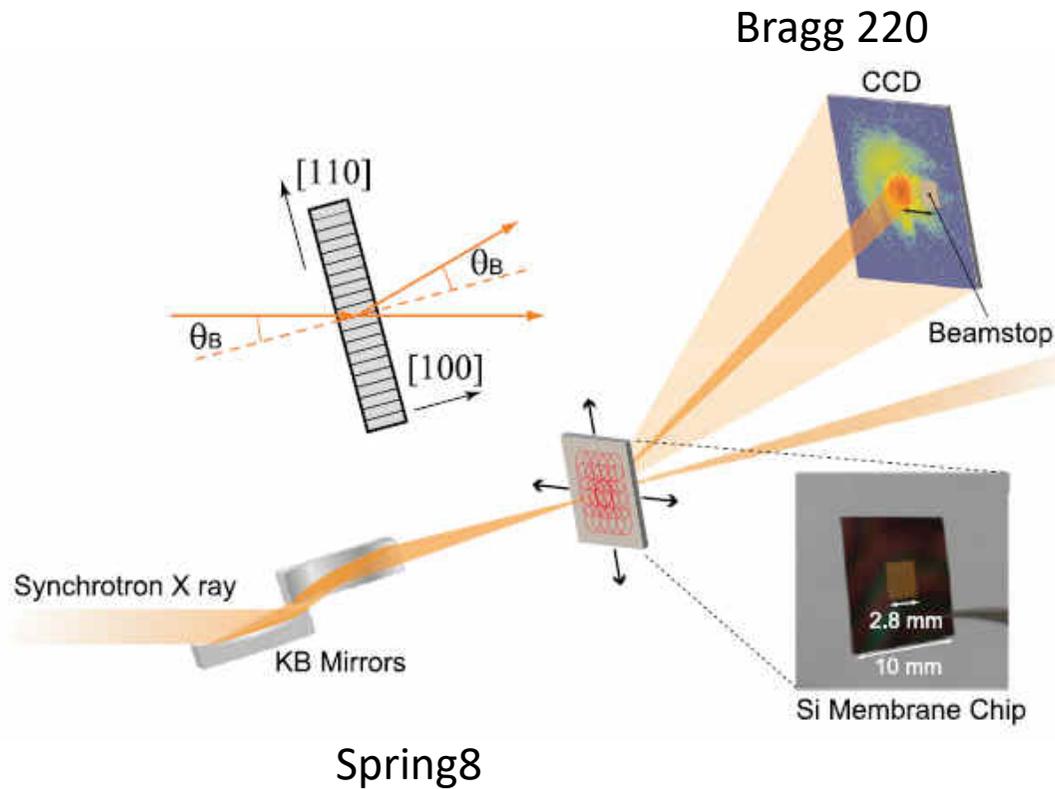
Ptychographie: imagerie sans lentille sur 'gros' échantillon

'gros' = plus grands que le faisceau cohérent utilisé...

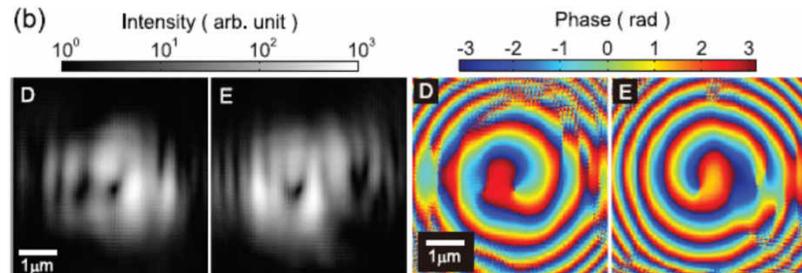


On applique l'algorithme CDI pour chaque image prise en chaque position
Contrainte espace réel: recouvrement entre positions

Ptychographie de Bragg et champ de déformation



Champ de déformation
autour de dislocations

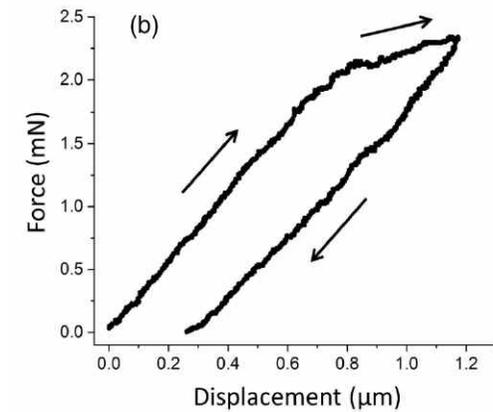
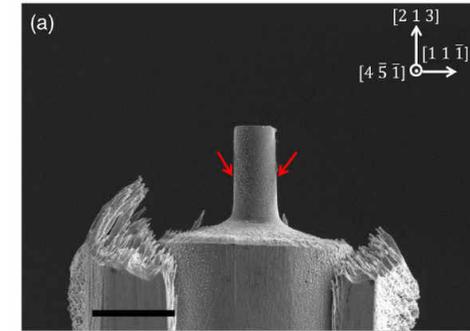
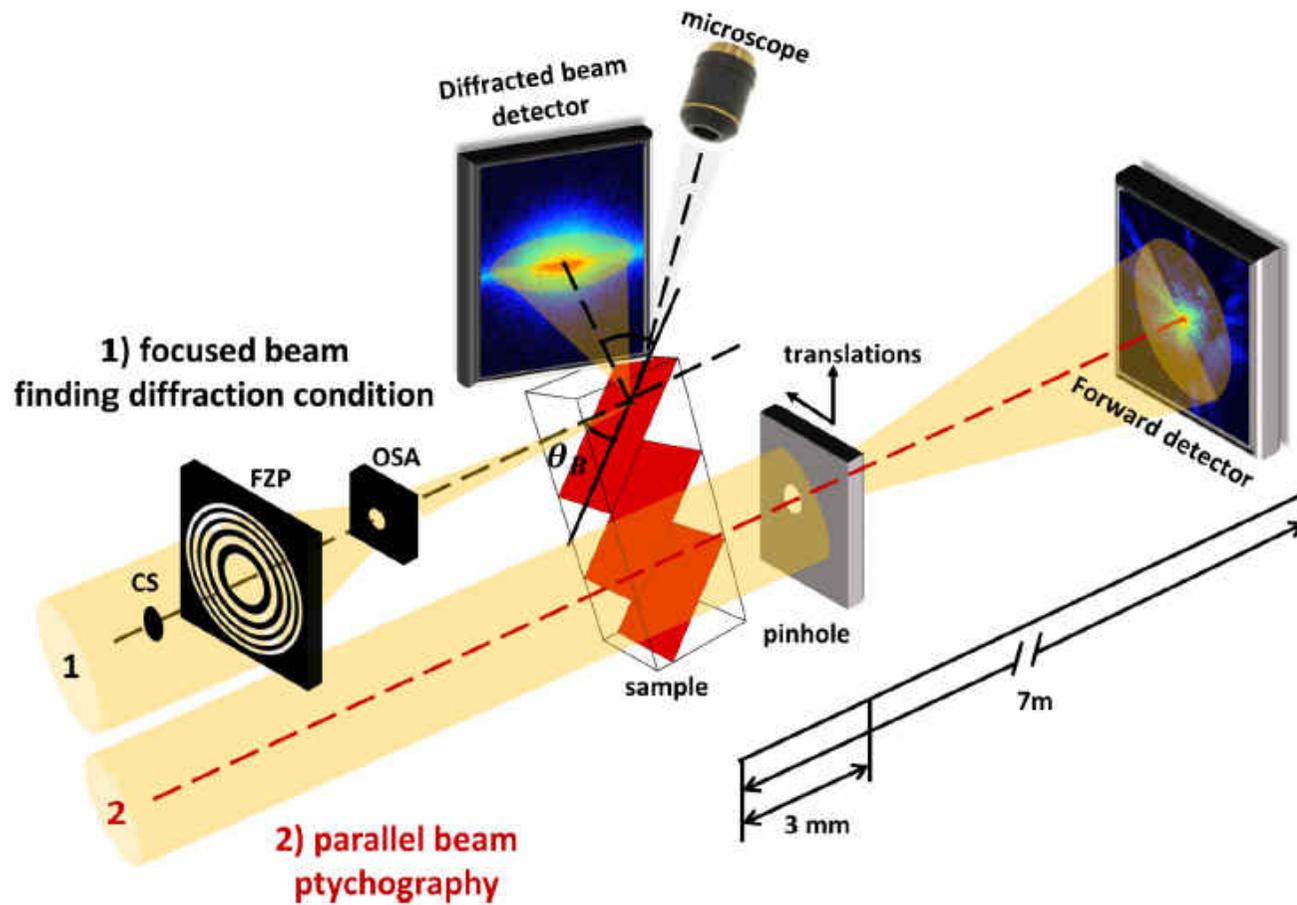


Génération de faisceaux vortex
(faisceau diffracté par le volume contenant la dislo)

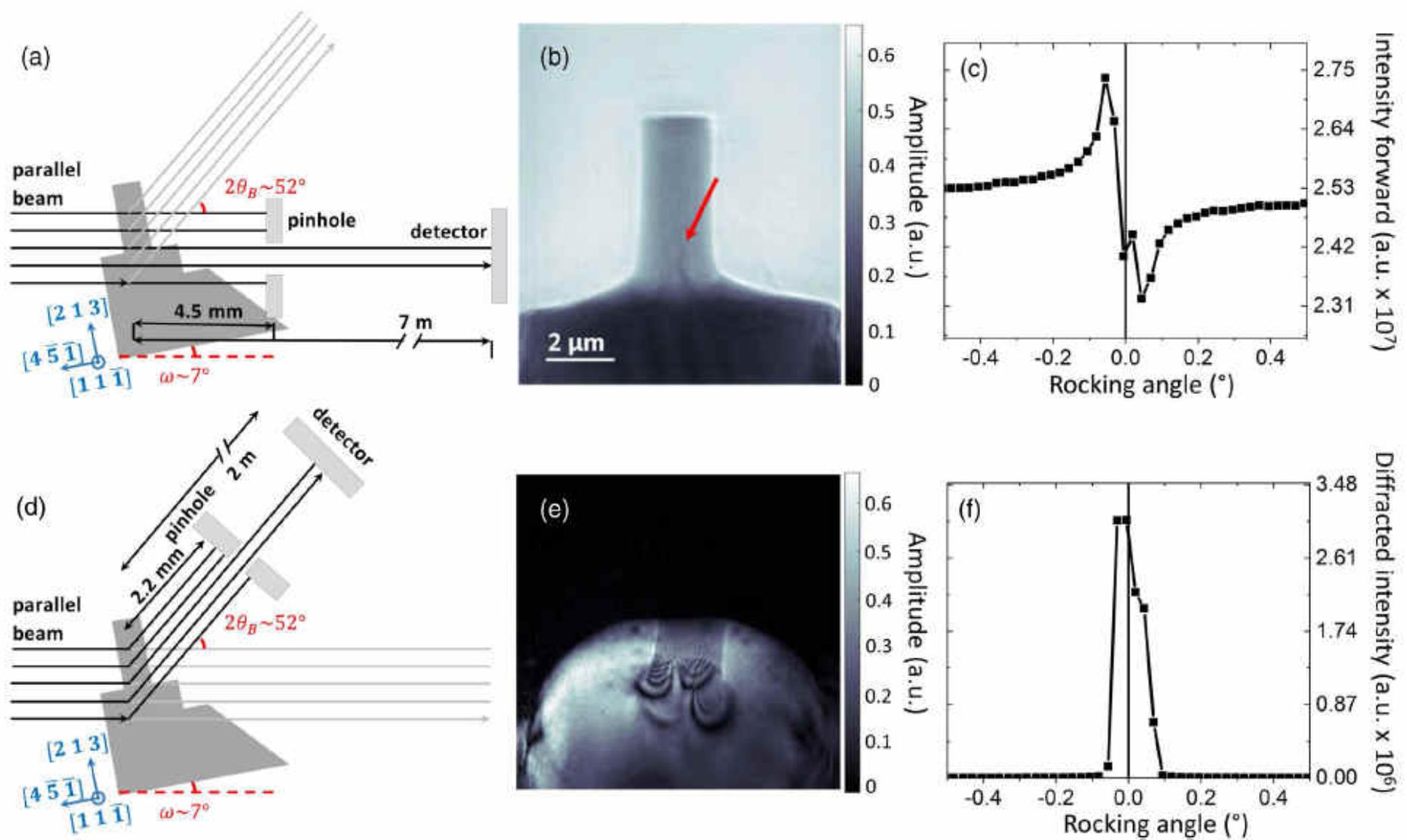
Takahashi et al., PRB 87, 121201 (2013)

Une technique testée récemment: la ptycho-topographie

Collaboration SLS, Institut Pprime, LPS



Détection de défauts et contraintes



Conclusion

Cohérence des faisceaux X: de plus en plus répandu, notamment avec les nouvelles sources naturellement cohérentes (synchrotrons de dernière génération et XFEL)

Les défauts cristallins vus en diffraction cohérente des rayons X:

- Sensibilité aux défauts en volume
- Technique à adapter en fonction de l'expérience considérée (CDI, ptychographie, analyse du diffractogramme+simulations...)
- Peut être utilisé in-situ sous diverses conditions expérimentales (déformation mécanique, sous pression, en température ...)
- Utilisé pour des objets périodiques de nature diverse: par exemple, application à des systèmes d'électrons corrélés, mise en évidence de solitons de charge dans des ondes de densité de charge
- Relativement peu de travaux dans le domaine: à vous de jouer !

